



Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques

Alice Berthelot

► To cite this version:

Alice Berthelot. Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2008. Français. NNT: . tel-00353151

HAL Id: tel-00353151

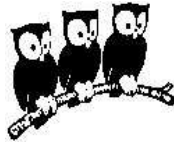
<https://theses.hal.science/tel-00353151>

Submitted on 14 Jan 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE NORMALE SUPERIEURE
Département de Physique



THESE de DOCTORAT de L'UNIVERSITE PARIS VI

Spécialité : Physique des Solides

présentée par

Alice Berthelot

**Diffusion spectrale et rétrécissement par le
mouvement dans les boîtes quantiques**

Soutenue le 24 Octobre 2008 devant le jury composé de :

Philippe Roussignol	(Directeur de thèse)
Fabrice Vallée	(Rapporteur)
Bernard Gil	(Rapporteur)
Maria Chamarro	(Examineur)
Kuntheak Kheng	(Examineur)
Maurice Skolnick	(Membre invité)
Jean-Michel Gérard	(Membre invité)
Guillaume Cassaboïs	(Membre invité)

Laboratoire Pierre Aigrain
Ecole Normale Supérieure - 24 rue Lhomond - 75005 Paris

Remerciements

La thèse est synonyme de travail, mais elle rime également avec rencontres heureuses et relations humaines. J'aimerais remercier tous ceux qui ont été présents tout au long de ces trois années et sans qui rien n'aurait été possible.

Merci à tous les membres du jury pour s'être intéressés à mes travaux et pour leurs remarques très constructives : Fabrice Vallée, Bernard Gil, Jean-Michel Gérard, Maria Chamarro, Kuntheak Kheng et Maurice Skolnick.

Je tiens à remercier Claude Delalande et Jean-Marc Berroir, directeurs successifs du LPA pour leur accueil au sein du laboratoire. Merci à tout le groupe d'optique du LPA pour son accompagnement tout au long de cette thèse. Un grand merci à Guillaume Cassabois pour avoir encadré mon travail. Tu as toujours été là quand il fallait et surtout quand les boîtes s'avéraient capricieuses. Je souhaite remercier Philippe Roussignol, mon directeur de thèse, pour sa présence et ses conseils souvent perspicaces. A ton contact, j'ai beaucoup appris. Un grand merci à Christophe Voisin, Jérôme Tignon et Christos Flytzanis pour leurs conseils précieux. Merci à Robson Ferreira et Gerald Bastard avec qui j'ai partagé discussions théoriques et cafés à la vanille.

Je souhaite remercier tous les techniciens et ingénieurs avec qui j'ai travaillé. Collaborer avec eux a été tellement agréable et productif qu'ils sont, sur de nombreux plans, responsables du bon déroulement de ma thèse : Pascal Morfin, Laurent Réa, Martial Nicolas, Sylvain Pledel et Jean-Charles Dumont. Un grand merci à l'équipe de choc des électroniciens : Anne Denis, Philippe Pace et David Darson. David, tu n'a jamais frémis devant les humeurs du compteur de photon. Merci à tous les cryogénistes et surtout Olivier Andrieu qui ont rendu chaleureuse la cryogénie. Merci à tous les informaticiens du laboratoire ou du département avec lesquels j'ai collaboré, en particulier, Frédéric Ayrault et Zaïre Dissi. Il ne faut pas oublier les personnes incontournables du laboratoire : Anne Matignon et Fabienne Renia. Leur gentillesse, leur disponibilité et leur dynamisme m'ont beaucoup apporté.

Enfin je voudrais saluer tous ceux que j'ai rencontré au laboratoire et dans le département. Leur bonne humeur et les discussions auxquelles ils se prêtent

volontier permettent de relativiser les soucis et les doutes du doctorant souvent catastrophé par les ennuis de manip :

- Michael Rosticher qui, malgré des journées sans fin, est là quand il faut et veille toujours au moral des troupes.

- Patrice Mathieu, Jean-Paul Maneval et François-René Ladan qui, bien que délocalisés entre la GH12 et la GH21, ont été un véritable rayon de soleil lorsque mes expériences manquaient de photons.

- Christophe Mora et Nicolas Regnault dont le soutien a été bien plus que théorique.

Je n'oublierai pas les adversaires de rugby : Elise Praly, Olivier Andrieu, Michael Rosticher, Jean-François Allemand et Suhkdeep Dhillon.

Merci aux thésards et amis de la mézannine : Arnaud Labourt-Ibarre, Sébastien Berger, Arnaud Verger, Ivan favero, Carole Diederichs, Thimothé Lecomte Trung Nguyen, Florian Iglesias et Hai-Son Nguyen. Vous avez rendu la mezzanine très chaleureuse, agréable et motivante. Merci également à Thomas Grange, Andreas Emmert, Dimitri Oustinov, Mathieu Melich, Julien Chaste, Adrien Mahé, Camille Breme, Chéryl Feuillet-Palma, Thomas Delattre, François Parmentier et Francesca Carosella.

Enfin merci aux copains de Lyon et d'ailleurs : Elise, Mickael, Noelle, Aurélie, Judith et Eve. Je tiens à remercier toute ma famille pour tout ce qu'elle m'a apportée. Mille merci enfin à Mathieu.

Enfin je voudrais dédier cette thèse au Montagnon dont j'ai hérité curiosité et passion de la physique.

Table des matières

1	Les boîtes quantiques InAs/GaAs	1
1.1	Du semiconducteur massif à la boîte quantique	1
1.1.1	Structure électronique des semiconducteurs	1
1.1.2	Effet du confinement sur la structure de bandes	7
1.1.3	Applications des boîtes quantiques	7
1.2	Synthèse des boîtes quantiques	9
1.2.1	Réaliser un confinement tridimensionnel	9
1.2.2	Croissance auto-organisée de Stransky-Krastanov	10
1.2.3	Etats électroniques du système	11
1.2.4	Energie des états de paire électron-trou	15
1.3	La boîte quantique dans son environnement	18
1.3.1	Interaction avec un champ électromagnétique	18
1.3.2	Phénomène de décohérence	20
1.3.3	Couplage avec les phonons	23
1.4	Décohérence de $S_e S_h$	25
1.4.1	Couplage fort avec les phonons optiques	25
1.4.2	Ailes de phonons acoustiques	27
1.5	Conclusion	32
2	Dipositifs expérimentaux	35
2.1	MicroPL sur boîte unique	35
2.1.1	Principe de la photoluminescence	35
2.1.2	Microphotoluminescence de boîte quantique unique	39
2.1.3	Présentation des échantillons utilisés	41
2.2	Micro-PL sous champ électrique	43
2.2.1	Evaluation du champ électrique régnant au sein de l'échantillon	43
2.2.2	Photoluminescence d'une boîte quantique sous champ électrique	46
2.3	Spectroscopie par transformée de Fourier	51
2.3.1	Principe	51
2.3.2	Interféromètre de Michelson	53
2.3.3	Traitement des données	54
2.4	Conclusion	56

3	Phénomène de diffusion spectrale	57
3.1	Origines et manifestations	58
3.1.1	Définition	58
3.1.2	Manifestation	58
3.1.3	Spectre émis par un objet unique	63
3.2	Modélisation	65
3.2.1	Rappels de probabilité	65
3.2.2	Système en interaction avec un TLS	67
3.2.3	Bruit pré-gaussien	73
3.2.4	Calcul de la fonction de relaxation	74
3.2.5	Théorème de la limite centrale	74
3.3	Modèle de Kubo-Anderson	75
3.3.1	Rôle de $\Sigma\tau_c$ sur la nature du spectre d'émission	76
3.3.2	Régime de rétrécissement par le mouvement	78
3.3.3	Conclusion	81
4	Résultats expérimentaux	83
4.1	Transition Lorentzien-Gaussien	84
4.1.1	Etude en Puissance	84
4.1.2	Evolution en température	91
4.1.3	Modèle microscopique des fluctuations de l'environnement	95
4.2	Autres boîtes quantiques	107
4.2.1	Elargissement en température et en puissance pour 4 autres boîtes quantiques	107
4.2.2	Ajustements et interprétations	111
4.2.3	Fluctuation intraboîte ou extraboîte	115
4.2.4	Conclusion	120
4.3	Boîte quantique sous champ électrique	121
4.3.1	Caractérisation de la boîte quantique sous champ électrique	122
4.3.2	Evolution du profil de raie excitonique sous champ électrique transverse	126
4.3.3	Modélisation	129
4.3.4	Analyse des résultats	130
4.3.5	Choix de la fonction contraste	130
4.3.6	Contrôle du rétrécissement par le mouvement par effet tunnel	136
4.3.7	Rétrécissement par le mouvement assisté par effet tunnel	142
4.4	Conclusion	145

Table des figures

1.1	Effet du couplage spin-orbite sur la structure de bande réduite d'un semiconducteur à gap direct.	2
1.2	Evolution de la densité d'état avec le niveau de confinement quantique. fig (a) Aucun confinement, fig (b), confinement selon une direction (système 2D), fig (c) confinement selon deux directions (système 1D) et fig (d) confinement selon les trois directions (système 0D).	8
1.3	Principe de piègeage	9
1.4	Les différentes étapes pour le mode de croissance de Stransky-Krastanov.	11
1.5	Image AFM d'un plan de boîte d'InAs.	11
1.6	Effet de la contrainte sur la structure de bande des semiconducteurs III-V : à gauche dans les matériaux massifs non contraint, à droite en prenant en compte les contraintes.	12
1.7	Représentation schématique d'une boîte.	12
1.8	Structure de bande pour une boîte quantique.	13
1.9	Structure de la densité d'états électroniques du système boîte quantique et de son environnement. Les niveaux discrets de la boîte quantique (BQ) apparaissent ainsi que le continuum bidimensionnel de la couche de mouillage (WL) et le continuum tridimensionnel du GaAs Massif.	15
1.10	Calcul du spectre d'absorption d'une boîte quantique unique. Le trait en pointillé est l'absorption de la couche de mouillage seule en représentation paire électron-trou [1].	17
1.11	Evolution du spectre d'absorption de l'état S_e en fonction du champ magnétique [2]. Les points correspondent aux résultats expérimentaux et les traits pleins la modélisation théorique [2].	26
1.12	Evolution théorique des premiers niveaux de boîte en fonction du champ magnétique sans tenir compte du couplage de Fröhlich. . .	26
1.13	Couplage fort entre états de paire de la boîte et phonon optique (ligne à motif). L'énergie de référence est l'énergie de l'état factorisé ($S_e S_h, 0ph$) dépendant du rayon R de la boîte. En traits pleins sont représentés les différents états sans couplage [3].	27

1.14	Accord théorie expérience pour les ailes de phonons d'une boîte quantique. En encart, l'évolution en température de la largeur spectrale de la raie centrale lorentzienne [4].	28
1.15	Evolution du rapport Γ_0/Γ_0^{WL} pour différentes boîtes quantiques. Chaque symbole correspond à une boîte quantique. E_{QD} est l'énergie de l'exciton de la boîte quantique étudiée. Γ_0 est la largeur à mi-hauteur extrapolée à 0K pour un pompage à l'énergie E_{ex} . Γ_0^{WL} est la largeur à mi-hauteur extrapolée à 0K pour un pompage dans la couche de mouillage [5].	32
2.1	Principe de la photoluminescence de boîte quantique.	36
2.2	Schéma de montage de microphotoluminescence de boîte quantique unique.	37
2.3	Figure d'interférences dues aux inhomogénéités d'épaisseur de la barette CCD	38
2.4	Spectre de microphotoluminescence obtenu avec la barette CCD. On peut distinguer trois raies correspondant à trois boîtes quantiques.	40
2.5	structuration des échantillons	40
2.6	Echantillon utilisé pour l'étude optique d'une boîte quantique sous champ électrique.	42
2.7	Structure de bande pour un contact schottky non polarisé (fig (a)) ou polarisé en inverse (fig(b)).	44
2.8	Structure de bande de la diode contenant des boîtes quantiques. La position des états discrets de la boîte par rapport au niveau de Fermi est contrôlée à l'aide de la tension appliquée V_a	45
2.9	Evolution du courant de diode en fonction de la tension appliquée. La diode est polarisée en inverse tant que $V_a < -V_s$	45
2.10	Représentation schématique des énergies caractéristiques de la boîte quantique sous champ électrique [6].	47
2.11	Evolution des énergies des états de la boîte en fonction de la tension appliquée V_a . Les traits pleins correspondent aux états stables, les traits pointillés aux états instables. [6]	48
2.12	Evolution du premier état de conduction de la boîte quantique en fonction de la tension V_a appliquée. Fig (a) $V_a < V_3$, Fig (b) $V_a = V_3$ et Fig(c) $V_3 < V_a$	49
2.13	Evolution du spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique en fonction de la tension appliquée pour une température de T=10K, sous excitation He-Ne.	50
2.14	Enregistrement d'un interférogramme, pas = 10 fs, durée d'intégration = 0.5 s, temps total pour de la mesure : 41 min.	53

3.1	Trois spectres d'une même boîte quantique de CdSe pris à une minute d'intervalle [7].	59
3.2	Evolution temporelle d'un ensemble de raies de boîtes quantiques de CdSe [8].	59
3.3	Evolution de l'émission de la molécule au cours du temps [9]. . . .	61
3.4	Changement de configuration de l'enzyme [9].	61
3.5	Evolution du spectre d'émission d'un ensemble de boîtes, entre les deux flèches la puissance d'excitation est augmentée [10].	62
3.6	Modélisation de l'effet Stark sur une boîte quantique. En présence d'une charge proche, le champ électrique local est modifié, ce qui provoque par effet Stark une modification de l'énergie de recombinaison de la boîte.	62
3.7	Evolution de $\delta\omega(t)$	64
3.8	Evolution de $\delta\omega(t)$ dans le cas d'un seul TLS [11].	67
3.9	$C(\tau)$ calculé à partir du modèle à un seul TLS pour différentes valeurs de αT . (a) $\alpha T = 0.1$, (b) $\alpha T = 1$, (c) $\alpha T = 2$ et (d) $\alpha T = 10$	70
3.10	$S(\omega)$ calculé à partir du modèle à un seul TLS pour différentes valeurs de αT . (a) $\alpha T = 0.1$, (b) $\alpha T = 1$, (c) $\alpha T = 2$ et (d) $\alpha T = 10$	72
3.11	Deux représentations possibles pour un même bruit. Les trois TLS de la première figure produisent un processus de bruit évoluant entre 4 valeurs [11].	73
3.12	Evolution du contraste (trait plein) pour $\Sigma\tau_c=0.2$ (fig (a)), 1 (fig (b)) et 8 (fig (c)). L'approximation gaussienne est représentée (tiret) ainsi que l'approximation lorentzienne (pointillé).	77
3.13	Evolution du profil de RMN en fonction de la température. Le profil est globalement gaussien à basse température (198K) et évolue vers un profil lorentzien étroit à température ambiante (298K) [12]. . . .	79
3.14	Evolution de $\Delta\psi(t) = \int_0^t d\nu\delta\omega(\nu)$ pour les deux situations $\Sigma\tau_c > 1$ et $\Sigma\tau_c < 1$	80
3.15	Evolution de la précession du spin selon $\Omega(\vec{k})$ entre deux chocs consécutifs décrits par les vecteurs d'ondes \vec{k}_i et \vec{k}_{i+1}	80
4.1	Evolution du profil de raie de la boîte LG en fonction de la puissance d'excitation pour une température $T=10\text{ K}$. La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre. (a) $P=0.18\text{ kW.cm}^{-2}$, (b) $P=0.72\text{ kW.cm}^{-2}$ et (c) $P=2.88\text{ kW.cm}^{-2}$. On notera le changement d'échelle de l'axe horizontal pour les figure (b) et (c).	85
4.2	Evolution de la position spectrale de la raie LG en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K	86

4.3	Evaluation des intensités du fond de luminescence et du signal de PL de la boîte quantique à partir d'un spectre obtenu avec la barrette CCD pour une puissance de 0.72 kW.cm^{-2} et une température de 10 K.	87
4.4	Ajustement théorique pour la transition en puissance : (a) $P=0.18 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 0.6$; (b) $P=0.72 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 1.05$; (c) $P=2.88 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 1.35$	88
4.5	Evolution du produit $\Sigma\tau_c$ avec la puissance d'excitation pour $T=10 \text{ K}$	90
4.6	Evolution avec la puissance d'excitation de la largeur à mi-hauteur de la boîte LG, pour une température de 10 K.	91
4.7	Evolution du profil de raie de la boîte LG (carrés) pour 3 températures : fig(a) 10 K, fig(b) 35 K et fig(c) 45 K pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2} . La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre.	92
4.8	Evolution en température du contraste corrigé (carrés) et théorique (ligne pleine). La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre. (a) 10 K, $\Sigma\tau_c = 0.48$; (b) 35 K, $\Sigma\tau_c = 0.91$; et (c) 45 K, $\Sigma\tau_c = 1,38$	93
4.9	Evolution de rapport $\Sigma\tau_c$ avec la température pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2}	94
4.10	Evolution de la largeur de raie de la boîte LG en fonction de la température pour une puissance de $0,088 \text{ kW.cm}^{-2}$	95
4.11	Représentation schématique de la modélisation d'une boîte quantique en interaction avec N pièges identiques. Chaque piège engendre un décalage Stark Δ de la raie.	95
4.12	A gauche : Processus de piégeage caractérisé par le temps moyen τ_{\downarrow} . A droite : processus de dépiégeage caractérisé par le temps moyen τ_{\uparrow}	96
4.13	Evolution du temps de corrélation τ_c , normalisé à τ_{\downarrow} , en fonction du rapport $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow}$ obtenu par simulation de Monte-Carlo (carrés) et à partir de l'expression 4.11 (ligne).	97
4.14	Evolution de l'écart-type Σ en fonction de l'asymétrie $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow} = y$ obtenue à partir des simulations de Monte Carlo (carrés) et à partir de l'expression 4.24 (ligne pleine).	100
4.15	Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution du produit $\Sigma\tau_c$ en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \text{ } \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$	102

4.16	Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu eV$, $\tau_1 = 35 ns$, $\tau_2 = 10 ps$, $\tau_3 = 1.3 ns$, $P_0 = 25 kW.cm^{-2}$, $E_1 = 1 meV$ et $E_2 = 20 meV$	103
4.17	Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution du produit $\Sigma\tau_c$ en fonction de la température pour une puissance d'excitation de $0.088 kW.cm^{-2}$. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu eV$, $\tau_1 = 35 ns$, $\tau_2 = 10 ps$, $\tau_3 = 1.3 ns$, $P_0 = 25 kW.cm^{-2}$, $E_1 = 1 meV$ et $E_2 = 20 meV$. . .	103
4.18	Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la température pour une puissance d'excitation de $0.088 kW.cm^{-2}$. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu eV$, $\tau_1 = 35 ns$, $\tau_2 = 10 ps$, $\tau_3 = 1.3 ns$, $P_0 = 25 kW.cm^{-2}$, $E_1 = 1 meV$ et $E_2 = 20 meV$	104
4.19	Evolution de la position spectrale de la boîte LG mesurée (carrés) et théorique (ligne).	106
4.20	Evolution de la largeur à mi-hauteur Γ en fonction de la puissance d'excitation et en fonction de la température du milieu.	108
4.21	Elargissement en température de la raie à 0 phonon de la boîte A pour une puissance d'excitation de $0.045 kW.cm^{-2}$ (a) et $5.75 kW.cm^{-2}$ (b) (carrés) et ajustement linéaire permettant de calculer le coefficient α entre 10 K et 40K (trait plein).	110
4.22	Evolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la puissance d'excitation à 20 K (ronds). Modélisation théorique en prenant $\beta = 0.5$ (tirets) et $\beta = 2$ (traits pleins). . . .	112
4.23	Résultats expérimentaux et théorique pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la température et de la puissance d'excitation. Les paramètres d'ajustements sont $\hbar\Sigma_s = 150 \mu eV$, $\tau_1 = 200 ps$, $\tau_2 = 5 ps$, $\tau_3 = 35 ps$, $E_1 = 1 meV$ et $E_2 = 30 meV$, $\beta = 2$, $P_0 = 0.96 kW.cm^{-2}$	113
4.24	Deux processus de fluctuation intraboîte [13].	116
4.25	Evolution du spectre d'émission de la boîte quantique en fonction du paramètre η , pour trois valeurs de x différentes : (a) $x = 5$, (b) $x = 1$ et (c) $x = 1$	119
4.26	Evolution de la largeur à mi-hauteur Γ de l'exciton neutre, mesurée par spectroscopie de photocourant en fonction de la tension appliquée : résultats expérimentaux (cercles) et modélisation par approximation WKB (trait plein)[14].	122

4.27	Cartographie de la photoluminescence d'une boîte quantique en fonction de la tension appliquée pour une puissance d'excitation de 0.80 kW.cm^{-2} et une température de 10 K.	122
4.28	Evolution de l'énergie de transition en fonction du champ électrique régnant pour 4 échantillons [15].	124
4.29	Représentation schématique de notre configuration d'étude : le champ électrique s'oppose au dipôle permanent de la boîte.	124
4.30	Evolution de l'intensité de la raie excitonique de la boîte caractérisée par une énergie de recombinaison valant 1.309 eV à -0.2 V . La figure de gauche correspond à une puissance d'excitation de $0,88 \text{ kW.cm}^{-2}$ et celle de droite à une puissance de 1.76 kW.cm^{-2}	125
4.31	Existence d'un gaz de trous bidimensionnel [16].	125
4.32	Evolution du contraste en fonction de la tension appliquée pour $T=10 \text{ K}$ et $P=0.88 \text{ kW.cm}^{-2}$ pour différentes tensions : (a) $V_a = -0.18\text{V}$, (b) $V_b = -0.20\text{V}$, (c) $V_a = -0.22\text{V}$, (d) $V_a = -0.24\text{V}$ et (e) $V_a = -0.26\text{V}$	127
4.33	Evolution du contraste en fonction de la tension appliquée pour $T=30 \text{ K}$ et $P=0.88 \text{ kW.cm}^{-2}$ pour différentes tension : (a) $V_a = -0.20\text{V}$, (b) $V_b = -0.22\text{V}$, (c) $V_a = -0.24\text{V}$, (d) $V_a = -0.26\text{V}$ et (e) $V_a = -0.28\text{V}$	128
4.34	Evolution en tension des contrastes mesurés à 10K (carrés), des ajustements obtenus à partir de l'équation 4.56 (trait plein) et de la composante $C_{Kubo}(\tau)$ seule donnée par l'équation 4.58 (pointillés), pour différentes tensions : (a) $V_a = -0.18\text{V}$, (b) $V_b = -0.20\text{V}$, (c) $V_a = -0.22\text{V}$, (d) $V_a = -0.24\text{V}$ et (e) $V_a = -0.26\text{V}$	131
4.35	Spectres obtenus pour deux temps d'échappement différents. Cas du piège globalement vide (a) et cas du piège globalement plein (b).	133
4.36	Evolution du produit $\Sigma\tau_{c1}$ donnée par l'équation 4.61 en fonction du temps d'échappement avec $\hbar\Sigma_s = 56 \text{ } \mu\text{eV}$ et $\tau_{\downarrow 1} = 45 \text{ ps}$	133
4.37	Evolution du contraste à 30K (carrés), des ajustements obtenus à partir de l'équation 4.56 (trait plein) et de la composante contraste $C_{Kubo}(\tau)$ seule donnée par l'équation 4.58 (pointillés) pour différentes tension : (a) $V_a = -0.20\text{V}$, (b) $V_b = -0.22\text{V}$, (c) $V_a = -0.24\text{V}$, (d) $V_a = -0.26\text{V}$ et (e) $V_a = -0.28\text{V}$	135
4.38	(a) : Evolution du temps d'échappement des N-1 pièges $\tau_{\uparrow 1}$ pour $T=10 \text{ K}$, $T=20 \text{ K}$ et $T=30 \text{ K}$. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage des N pièges $\tau_{\downarrow 1} = 45 \text{ ps}$. (b) : Evolution du temps d'échappement du piège singulier $\tau_{\uparrow 2}$ pour $T=10 \text{ K}$, $T=20 \text{ K}$ et $T=30 \text{ K}$. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage $\tau_{\downarrow 2} = 500 \text{ ps}$	136
4.39	Evolution de la largeur à mi-hauteur de la boîte quantique en fonction de la tension appliquée pour $T=10 \text{ K}$ (a) et $T=30 \text{ K}$ (b).	137

4.40	Evolution de l'inverse du temps d'échappement en fonction de la tension appliquée pour le piège singulier (b) et les N-1 pièges (a) pour T=10 K et T=30K.	138
4.41	(a) : Ajustement théorique de l'évolution du temps d'échappement du piège singulier $\tau_{\downarrow 2}$ pour T=10 K, T=20 K et T=30 K. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage du TLS singulier $\tau_{\downarrow 2} = 500$ ps. Figure (b) : Evolution du temps d'échappement des $N - 1$ piège $\tau_{\uparrow 2}$ pour T=10 K, T=20 K et T=30 K. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage des N pièges avec $\tau_{\downarrow 2} = 45$ ps.	139
4.42	Evolution de la largeur à mi-hauteur à 10 K (a) et 30 K (b) mesurée expérimentalement (symboles) et calculée par notre modèle WKB (trait plein) avec la tension V_a appliquée.	143

Introduction

Les semi-conducteurs sont essentiels en électronique car ils offrent la possibilité de contrôler, aussi bien la quantité de courant électrique susceptible de les traverser que la direction que peut prendre ce courant. La maîtrise progressive de la croissance cristalline des semiconducteurs a été telle que depuis les années 80, le dépôt de semiconducteurs est contrôlé à la monocouche atomique près. En utilisant des matériaux différents, il est alors possible de confiner les électrons dans des hétérostructures planaires appelées puits quantiques. Dans de telles structures, le confinement des porteurs augmente l'efficacité radiative de recombinaison. Les puits quantiques peuvent donc constituer la base de diode laser à bas courant de seuil (environ 100 A.cm^{-2} [17]). Utilisés comme photodiodes, ils sont d'excellents détecteurs infra-rouge [18]. Leur succès a encouragé la communauté scientifique à s'intéresser à des structures de plus basse dimensionnalité, comme les fils quantiques ou les boîtes quantiques. Dans ces dernières, il n'y a plus aucun mouvement libre des charges. Les niveaux d'énergie de la boîte sont alors discrets rminescent des spectres atomiques.

Une des premières utilisations a été dans le domaine optoélectronique, où cette discrétisation permet une réduction des courants de seuil (16 A.cm^{-2}) par rapport aux diodes laser à puit quantique [20, 21, 22].

Des utilisations plus récentes s'inscrivent dans le cadre de l'information quantique et sont fondées sur l'analogie atome-boîte. Dans le domaine de la cryptographie quantique, il est nécessaire de disposer de source de photon unique. Or il s'avère que les boîtes quantiques sont d'excellentes candidates. Le principe de Pauli qui interdit que deux électrons soient dans le même état quantique limite à deux le nombre d'électrons de même énergie localisés dans la boîte. Du fait de l'interaction coulombienne, cette boîte ne pourra émettre qu'un seul photon à une énergie donnée [23]. Etant déjà contenues dans une matrice cristalline, il est aisé d'intégrer ces structures dans des cavités électromagnétiques solides (micropilliers [24, 25, 26], cristaux photoniques [27] ou microdisques [28]). Ces microcavités permettent d'en contrôler l'émission. Ainsi, en régime de couplage faible, l'effet Purcell permet d'augmenter la cadence de ces sources de photons uniques.

Dans le même cadre de recherche, les boîtes quantiques pourraient être les éléments de base d'un ordinateur quantique [29, 30]. Pour constituer un qubit, la boîte doit être un dispositif à deux états, réinitialisable et couplé aux autres

qbits. Les deux états de ce qubit peuvent correspondre à deux états d'occupation différents de la boîte. L'état 0 est alors l'absence de charges dans la boîte et l'état 1 est la présence d'une paire électron-trou d'énergie minimale. L'information est alors contenue dans une superposition linéaire de ces deux états. Pour contrôler l'état de ce qubit il faut pouvoir réaliser des manipulations cohérentes des états de la boîte. Le premier contrôle cohérent a été obtenu par Patton *et al* en 2005 pour un tel qubit, [31]. Le temps de vie radiatif et le temps de décohérence limitent la rémanence de cette information. Hors excitation résonante, le temps de décohérence est beaucoup plus court (quelques dizaines de *ps*) [32] que le temps de vie radiatif (1 *ns*) [19]. Le déphasage pur est la source principale de dégradation de l'information stockée dans le qubit. C'est une manifestation de l'interaction des états localisés de la boîte quantique avec l'environnement. Il devient essentiel d'identifier tous les mécanismes intervenant dans la décohérence afin de la réduire.

De nombreux travaux ont mis en évidence le rôle essentiel joué par les phonons du réseau cristallin qu'ils soient optiques (effet polaron [35, 2]) ou acoustiques (ailes de phonons [33, 34]). Cependant un mécanisme demeure actif à basse température où les populations de phonons ne sont pas significatives : le couplage avec l'environnement électrostatique. Les fluctuations de cet environnement peuvent induire une variation temporelle des spectres d'émission. C'est le phénomène de diffusion spectrale [36, 13, 5].

La diffusion spectrale, identifiée pour la première fois en RMN, est un phénomène présent dans de nombreux domaines de la physique. Si on étudie l'émission d'un ensemble d'objets, les fluctuations de l'environnement sont moyennées et la diffusion spectrale n'affecte alors que le profil du spectre d'émission de l'ensemble. Il a fallu attendre le développement des techniques de spectroscopie sur objet unique pour pouvoir observer en temps réel les fluctuations du spectre d'émission. Le spectre observé dépend du temps d'intégration du détecteur. Si les fluctuations sont plus lentes que le temps d'intégration, le spectre de raie présente des intermittences. Ce phénomène est d'ailleurs devenu un critère pour savoir si l'objet étudié est bien unique. Si elles sont plus rapides, le spectre subit un élargissement inhomogène.

Cependant, si la rapidité des fluctuations de l'environnement devient telle que le système ne puisse plus les suivre [38, 37], l'effet de la diffusion spectrale est alors moyenné et le profil de raie s'affine. Ce phénomène est nommé rétrécissement par le mouvement. Ce régime rapide de diffusion spectrale a été identifié pour la première fois dans le cadre d'étude RMN [38, 12]. Il est aussi utilisé par Dyakonov et Perel pour expliquer le gel de la relaxation de spin des électrons dans les semiconducteurs massifs non centrosymétriques [39].

Pour les boîtes quantiques, le régime lent de diffusion spectrale a déjà été constaté expérimentalement dans les boîtes épitaxiées [40, 10, 8] ou les

nanocristaux [41]. Les spectres d'émission présentent alors des fluctuations de position, de largeur ou même d'intensité. Mais le régime de fluctuations rapides, c'est à dire de rétrécissement par le mouvement, n'a jamais encore été constaté pour des boîtes quantiques, ni pour aucun nano-objet. Ce mémoire propose une étude quantitative de la diffusion spectrale et la première mise en évidence expérimentale d'un régime de rétrécissement par le mouvement pour les spectres de boîte quantique.

Ce résultat s'appuie sur une étude expérimentale globale de la diffusion spectrale dans les boîtes quantiques. L'étude réalisée permet non seulement d'identifier le rôle de la diffusion spectrale sur la décohérence des états de la boîte quantique mais fournit aussi une compréhension des mécanismes de fluctuations affectant la diffusion spectrale. Nous pouvons alors proposer un modèle microscopique à l'origine de la diffusion spectrale affectant les boîtes. Cette description reproduit quantitativement nos résultats expérimentaux et justifie la nature non-conventionnelle du régime de rétrécissement par le mouvement pour les boîtes quantiques. La compréhension intime des mécanismes à l'origine des fluctuations de l'environnement électrostatique nous a enfin permis de proposer une méthode pour contrôler la diffusion spectrale affectant la boîte puis ensuite de la valider.

Cette thèse s'articule en quatre chapitres : présentation du sujet, description des dispositifs expérimentaux, théorie de la diffusion spectrale et résultats expérimentaux.

Dans un premier chapitre je rappellerai les propriétés générales des boîtes quantiques. A partir de la description des états électroniques du semiconducteur massif, je montrerai comment le confinement tridimensionnel affecte les états d'une boîte quantique. Une fois la discrétisation des niveaux d'énergie présentée, nous introduirons le formalisme de la matrice densité qui permet de caractériser l'action sur la cohérence du système des couplages entre la boîte quantique et son environnement. Je pourrai alors résumer l'état des connaissances sur les sources de décohérence associées à la transition fondamentale interbande des boîtes quantiques. Cette première partie s'achèvera sur le constat d'une incapacité à expliquer la décohérence à basse température, d'où la nécessité de tenir compte de l'environnement électrostatique de la boîte.

Dans un deuxième chapitre, je détaillerai le dispositif expérimental fondé sur la technique de microphotoluminescence d'objet unique. Après la description de la structure des deux échantillons utilisés au cours de nos travaux, je présenterai le dispositif de microphotoluminescence sous champ électrique. Il permet d'étudier l'effet du champ électrique sur les spectres de boîtes quantiques. Enfin j'exposerai la technique de spectrométrie par transformée de Fourier utilisant un interféromètre de Michelson. Elle autorise l'étude des profils spectraux avec une

grande précision.

Le troisième chapitre développe le modèle théorique permettant de calculer l'effet de la diffusion spectrale sur le spectre d'émission d'un objet unique. Ce modèle est fondé sur la modélisation TLS (Two Levels System) des fluctuations de l'environnement. Il permet d'expliquer à la fois la coalescence dans le cas d'une unique source de fluctuations, mais également le régime de rétrécissement par le mouvement dans le cas d'un grand nombre de fluctuations.

Enfin dans un dernier chapitre, je démontrerai par mes résultats expérimentaux le rôle essentiel que joue la diffusion spectrale sur le déphasage de l'exciton fondamental. Ces études spectrales prouvent que la boîte est dans un régime de rétrécissement par le mouvement à basse température. Notre modèle microscopique de diffusion spectrale permet, à partir du modèle de Kubo-Anderson, d'expliquer l'évolution du profil. Une fois les mécanismes de fluctuations compris et modélisés, nous prouverons qu'il est possible de contrôler cette diffusion spectrale en appliquant un champ électrique transverse. Le rétrécissement par le mouvement est ainsi assisté par effet tunnel. Ceci réduit les effets de fluctuation de l'environnement électrostatique sur les états localisés. La boîte quantique semble d'avantage protégée.

Chapitre 1

Les boîtes quantiques InAs/GaAs

Ce premier chapitre énonce les propriétés générales des boîtes quantiques de semiconducteurs. La boîte quantique est un système dans lequel les charges sont piégées selon toutes les directions ; elle présente alors des niveaux électroniques discrétisés, tel un atome artificiel. Mais à la différence des atomes isolés, les boîtes quantiques sont contenues dans des matrices cristallines, il y a alors interactions entre les niveaux électroniques de la boîte et son environnement. Ceci est un avantage si on veut coupler les niveaux électroniques de ce "quasi-atome" à des modes de cavités photoniques. Cependant les interactions de la boîte quantique avec les électrons de la matrice ou avec les fluctuations du réseau cristallin (phonons) affectent la cohérence de toute superposition d'états de la boîte quantique. Après avoir rappelé le calcul des états électroniques de la boîte quantique, nous résumerons l'état actuel des connaissances portant sur le phénomène de décohérence dans les boîtes quantiques.

1.1 Du semiconducteur massif à la boîte quantique

1.1.1 Structure électronique des semiconducteurs

Formation des bandes

Les premiers semiconducteurs qui ont été étudiés sont des éléments purs : Silicium, Germanium. Ce sont les éléments de la 4ème colonne de la classification périodique de Mendeleev possédant 4 électrons dans leur orbitale de valence. Mais les semiconducteurs peuvent être aussi composites, ils peuvent par exemple être constitués d'un élément de la 3ème colonne et d'un élément de la 5ème colonne (Matériau type III-V). Ainsi dans ces composés binaires, chaque maille élémentaire, constituée de deux atomes a 8 électrons de valence.

Les semiconducteurs que nous considérons (InAs et GaAs) cristallisent selon la structure Zinc-blende ZnS , double réseau cubique à faces centrées. La maille

élémentaire de ce cristal contient deux atomes, chaque maille élémentaire contient donc 8 électrons de valence. Dans cet arrangement cristallin, chaque atome a une coordination tétraédrique [17].

Lors de la formation du solide, les orbitales de valence des N mailles élémentaires se combinent pour former 8 bandes d'énergie. 4 bandes sont de type liant (S , P_x , P_y et P_z) et 4 de type antiliant (S^* , P_x^* , P_y^* et P_z^*). Chaque bande d'énergie peut contenir $2N$ électrons. Le semiconducteur possède $8N$ électrons de valence qui occupent donc les 4 bandes d'énergie les plus basses. La structure de bande est représentée sur la figure 1.1(a), chaque bande est décrite par son moment orbitalaire L .

La première bande vide sera la bande antiliante de symétrie Γ_6 (type S). C'est la bande de conduction. La bande de valence, elle, est 3 fois dégénérée du fait de sa symétrie P. En l'absence de couplage spin-orbite (SO), les 3 bandes P liantes sont

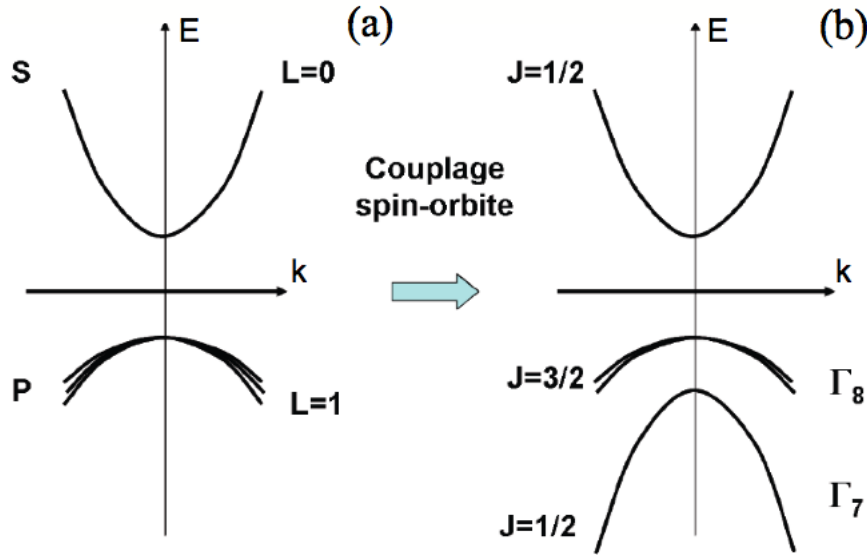


FIG. 1.1 – Effet du couplage spin-orbite sur la structure de bande réduite d'un semiconducteur à gap direct.

toutes dégénérées au point Γ , centre de la première zone de Brillouin ($\vec{k} = \vec{0}$). Le couplage spin-orbite lève cette dégénérescence. L n'est plus le bon nombre quantique et les bandes sont caractérisées par leur moment cinétique total J [42]. Il apparaît un quadruplet Γ_8 de moment cinétique total $J = 3/2$ et un doublet Γ_7 de moment $J = 1/2$. Le couplage SO déplace l'énergie de la bande Γ_7 vers des énergies plus basses (pour le GaAs $\Delta_{SO} = 340 \text{ meV}$) [18]. La bande de valence (bande pleine de plus haute énergie) est donc la bande Γ_8 ($J = 3/2$) (voir Fig. 1.1).

Le gap est l'énergie minimale séparant la bande de valence de la bande de conduction. La valeur du gap dépend du matériau considéré et notamment du

Type et nature du gap	Matériaux	Gap (eV)	paramètre de maille (Å)
Diamant	IV-IV	5.4 (direct)	3.6
Si	IV-IV	1 (indirect)	5.45
Ge	IV-IV	0.6 (indirect)	5.65
InAs	III-V	0.36 (direct)	6.05
GaAs	III-V	1.43 (direct)	5.65
GaN	III-V	3.39 (direct)	3.2
AlN	III-V	6.28 (direct)	3.1
CdTe	II-VI	1.44 (direct)	6.5
ZnTe	II-VI	2.26 (direct)	6.05

TAB. 1.1 – Gap et paramètre de maille de quelques semiconducteurs [17].

recouvrement des orbitales atomiques. Ainsi, si la taille des atomes augmente (en descendant dans les colonnes de la classification périodique), ou si l'ionicté des liaisons diminue, le recouvrement inter-orbitale sera favorisé, et le gap sera alors plus petit (voir Tab.1.1).

Dans cette thèse nous allons considérer uniquement InAs et GaAs. Leurs gaps sont suffisamment faibles pour que les transitions optiques correspondantes soient dans le visible ou le proche infrarouge. Ce sont des matériaux à gap direct. Cette propriété est très intéressante car la transition des électrons de la bande de conduction vers la bande de valence est radiative, contrairement au cas de Si ou de Ge qui sont à gap indirect (voir Tab. 1.1). Enfin la maîtrise de leur croissance en fait d'excellents composants pour la réalisation de dispositifs optoélectroniques [43].

Structure de bandes

Dans la partie précédente nous avons justifié qualitativement la structure de bandes des semiconducteurs à l'aide d'une approche LCAO (Linear Combination of Atomic Orbitals). Nous allons à présent détailler le calcul de ces bandes par la méthode $\vec{k}.\vec{p}$. L'étude optique de ces matériaux à gap direct, qui se fait au voisinage du gap, nécessite de connaître la structure de bande autour de Γ . L'hamiltonien total décrivant un solide s'écrit [18] :

$$H = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \sum_j \frac{P_j^2}{2M_j} + \frac{1}{2} \sum_{j,j'} \frac{Z_j Z_{j'} e^2}{|R_{j'} - R_j|} + \frac{1}{2} \sum_{i,i'} \frac{e^2}{|r_i - r_{i'}|} - \sum_{i,j} \frac{Z_j e^2}{|r_i - R_j|} \quad (1.1)$$

où r_i et p_i et R_j et P_j sont respectivement les positions et les quantités de mouvement de l'électron i et du noyau j . Z_j est la charge du noyau j . Les deux premiers termes correspondent à l'énergie cinétique des électrons (i) et des noyaux (j). Les trois derniers sont les termes d'interaction coulombienne noyau-noyau, électron-électron et noyau-électron.

Cet hamiltonien tient compte de tous les degrés de liberté du système, c'est à dire de l'ensemble des électrons et des noyaux. La résolution exacte de l'équation de Schrödinger associée s'avère difficile sans approximation. Le traitement classique consiste à se placer dans l'approximation de Born-Oppenheimer : les électrons réagissent de manière instantanée aux mouvements des noyaux (pour plus de détails voir [18] ou [44]). Ainsi en première approximation nous pouvons considérer que les électrons voient un réseau cristallin immobile. L'hamiltonien décrivant le mouvement des électrons devient :

$$H_e(r_i, R_{j0}) = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \frac{1}{2} \sum_{i,i'} \frac{e^2}{|r_i - r_{j'}|} - \sum_{i,j0} \frac{Z_j e^2}{|r_i - R_{j0}|} \quad (1.2)$$

où R_{j0} est la position du noyau j à l'équilibre.

En fait cette approximation adiabatique n'est pas suffisante pour pouvoir obtenir les états électroniques, le nombre d'électrons étant trop grand (typiquement $N \simeq 10^{23}$). L'approximation de Hartree-Fock consiste à considérer un électron unique, placé dans un nuage électronique moyen qu'il n'influence pas. Ce nuage est dû à l'ensemble de tous les autres électrons et induit un potentiel répulsif moyen, dit de champ moyen. L'électron est alors soumis à un potentiel $V(\vec{r})$ qui contient le potentiel attractif de l'arrangement cristallin et le potentiel répulsif de champ moyen engendré par les autres électrons.

Dans ce cas, les fonctions d'onde Φ des états à un électron vérifient l'équation de Schrödinger réduite :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) \Phi(\vec{r}) = E \Phi(\vec{r}) \quad (1.3)$$

Cette équation à un seul électron peut être encore simplifiée en considérant les symétries du cristal. En effet le potentiel $V(\vec{r})$ est périodique et possède les symétries du réseau cristallin. D'après le théorème de Bloch, toute fonction propre de l'hamiltonien 1.3, peut alors être décrite à partir de la base des fonctions de Bloch $\phi_{j,\vec{k}}(\vec{r})$. Ces fonctions sont les fonctions propres des opérateurs translations qui laissent le cristal inchangé. Elles s'écrivent :

$$\phi_{j,\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) u_{j,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.4)$$

où j est l'indice de bande, \vec{k} le vecteur d'onde.

La fonction $\phi_{j,\vec{k}}(\vec{r})$ est constituée de deux parties :

- La partie atomique $u_{j,\vec{k}}(\vec{r})$ qui a la même périodicité que le cristal,
- La partie onde plane $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})$ qui traduit l'invariance par translation dans le cristal.

Plusieurs méthodes existent pour déterminer la structure de chaque bande, c'est à dire l'évolution de l'énergie $E_j(\vec{k})$. Pour les électrons de coeur, la méthode

des liaisons fortes, dérivant de la méthode LCAO, est la plus appropriée car elle considère des électrons très liés aux noyaux. Mais pour les électrons de valence, cette approximation de localisation des électrons n'est plus valable [44].

Une première méthode de calcul utilise l'approximation des électrons presque libres. Elle permet de prendre comme fonction propre des combinaisons linéaires d'ondes planes. Mais cette méthode n'est pas assez réaliste pour décrire le comportement des électrons de valence au niveau des noyaux [44]. D'autres méthodes plus élaborées permettent d'obtenir les structures de bandes, par exemple la méthode du pseudopotentiel ou des ondes planes orthogonales [18]. Ces méthodes restent très lourdes alors que nous désirons seulement connaître la structure de bande au voisinage du point Γ . Dans ces conditions la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$ développée par Kane constitue l'approche la plus adaptée [45].

Méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$

L'égalité 1.3 permet d'obtenir l'équation que vérifie la partie atomique $u_{j,\vec{k}}(\vec{r})$:

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + \hbar \frac{\vec{k} \cdot \vec{p}}{m} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) u_{j,\vec{k}}(\vec{r}) = E_{j,\vec{k}} u_{j,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.5)$$

Si on se place en centre de zone Γ ($\vec{k} = 0$), l'équation 1.5 :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) u_{j,\vec{0}}(\vec{r}) = E_{j,\vec{0}} u_{j,\vec{0}}(\vec{r}) \quad (1.6)$$

La résolution de l'équation 1.6 permet de déterminer $u_{j,\vec{0}}(\vec{r})$ et l'énergie $E_{j,\vec{0}}$. Au voisinage de Γ , les termes en \vec{k} de l'équation 1.5 peuvent être traités comme des perturbations. La théorie des perturbations donne alors la structure de bande. On obtient par exemple pour des états non dégénérés :

$$E_{j,\vec{k}} = E_{j,\vec{0}} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m} + \frac{\hbar^2}{m^2} \sum_{j \neq j'} \frac{\left| \langle u_{j,\vec{0}}(\vec{r}) | \vec{k} \cdot \vec{p} | u_{j',\vec{0}}(\vec{r}) \rangle \right|^2}{E_{j,\vec{0}} - E_{j',\vec{0}}} \quad (1.7)$$

et

$$u_{j,\vec{k}}(\vec{r}) = u_{j,\vec{0}}(\vec{r}) + \frac{\hbar}{m} \sum_{j \neq j'} \frac{\langle u_{j,\vec{0}}(\vec{r}) | \vec{k} \cdot \vec{p} | u_{j',\vec{0}}(\vec{r}) \rangle}{E_{j,\vec{0}} - E_{j',\vec{0}}} u_{j',\vec{0}}(\vec{r}) \quad (1.8)$$

Cette méthode, d'autant plus adaptée que l'on reste au voisinage du centre de zone, permet d'introduire le concept de masse effective.

Approximation de la masse effective

L'approximation de la masse effective assimile la bande au voisinage de Γ à une parabole. Par définition, la masse effective $m_{\alpha\beta}^*$ est définie par l'expression :

$$\frac{1}{m_{\alpha\beta}^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial E_{j,\vec{k}}}{\partial k_\alpha \partial k_\beta} \Big|_{(\vec{k}=\vec{0})} \quad (1.9)$$

où α et β sont deux directions indépendantes. $m_{\alpha\beta}^*$ est donc un tenseur. Les masses effectives m_{xx}^* , m_{yy}^* et m_{zz}^* peuvent être différentes et dépendent de la bande considérée. Dans la suite de ce manuscrit nous nous placerons dans l'approximation la plus simple, en considérant des bandes isotropes est en confondant les masses effectives de InAs et GaAs. Les valeurs des masses effectives de la bande de valence et de la bande de conduction sont indiquées dans le tableau 1.2, m étant la masse de l'électron dans le vide.

particule fictive	masse effective
Bande de conduction Γ_6	$0.067m$
Bande de valence Γ_8	$-0.34m$

TAB. 1.2 – Masse effective selon (Oz) de l'électron dans la bande de conduction et de la bande de valence pour le GaAs.

Une nouvelle particule fictive : le trou

L'excitation lumineuse porte un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Ainsi la bande de valence ne contient plus que $2N - 1$ électrons et la bande de conduction un électron. Deux représentations existent, la première considère les $2N - 1$ de la bande de valence. Cette description est très lourde car l'état de la bande de valence est décrit avec $2N - 1$ entités. Une deuxième représentation consiste à s'intéresser uniquement au défaut d'électron de la bande de valence, c'est le trou de la bande de valence. Les grandeurs caractérisant ce trou sont toutes de signes opposés à celles de l'électron manquant. Ainsi par exemple sa masse effective vaut $0.34m$ pour GaAs et son énergie est d'autant plus faible que le niveau électronique est élevé en énergie.

Excitons dans les semiconducteurs

Les électrons et les trous sont de charges opposées et s'attirent en formant des paires électron-trou de type hydrogénoïde. Cette paire, corrélée par l'interaction coulombienne, est appelée *exciton*. Dans les semiconducteurs, les masses effectives des trous et des électrons sont beaucoup plus petites que les masses mises en jeu dans le modèle de l'atome de Bohr (voir Tab.1.2). Les rayons de Bohr associés au

mouvement de l'électron autour du trou sont beaucoup plus grands (16Å pour le GaAs) que le pas du réseau cristallin (quelques nanomètres). Ce sont des excitons de Mott-Wannier [46].

1.1.2 Effet du confinement sur la structure de bandes

Dans l'approximation de la masse effective, nous pouvons calculer la longueur de De Broglie associée à l'électron de conduction, de masse effective m_e^* et d'énergie thermique kT :

$$\lambda_B = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2^*m_e^*kT}} \quad (1.10)$$

Pour un électron de conduction dans le GaAs à 10K, nous trouvons une longueur de De Broglie égale à 50 nm. Si on restreint le mouvement de l'électron sur des distances inférieures ou égales à cette longueur λ_B suivant une ou deux directions, l'énergie des niveaux électroniques est quantifiée suivant ces directions de confinement. Elle peut alors s'écrire :

$$E = E_n + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} \quad (1.11)$$

où E_n est l'énergie quantifiée associée au confinement. Le second terme est l'énergie due au mouvement libre de l'électron dans les directions sans confinement, \vec{k} est le vecteur d'onde associé. Les différentes classes de confinement sont représentées sur la figure 1.2 avec les densités d'états électroniques associées. Si le confinement se fait selon une unique direction, ces structures sont appelées *puits quantiques* (système 2D), la densité des niveaux d'énergie est en "marche d'escalier" (voir figure (b)). Si l'électron est libre selon une direction (système 1D), on a un *fil quantique* avec une densité d'état en $1/\sqrt{E - E_n}$ (voir figure (c)). Enfin si l'électron est confiné selon toutes les directions (système 0D) il s'agit d'une *boîte quantique* (voir figure (d)). Dans ce dernier cas, l'énergie est complètement discrétisée. Les états électroniques dans cette boîte sont analogues aux orbitales atomiques décrivant le nuage électronique des atomes.

Ainsi, les boîtes quantiques sont souvent assimilées à des *atomes artificiels*. Cette première description de la boîte quantique nous permet d'imaginer le potentiel de cette structure possédant les propriétés d'un atome mais intégrable dans des systèmes optoélectroniques. Nous présentons brièvement dans la section suivante quelques applications.

1.1.3 Applications des boîtes quantiques

Les premières applications ont consisté à insérer les boîtes quantiques dans les diodes lasers en vue d'améliorer les structures à puits quantiques [20]. Le caractère discret des niveaux d'énergie permet d'envisager un gain supérieur à celui obtenu dans une structure à puits et donc d'abaisser le seuil du fonctionnement du

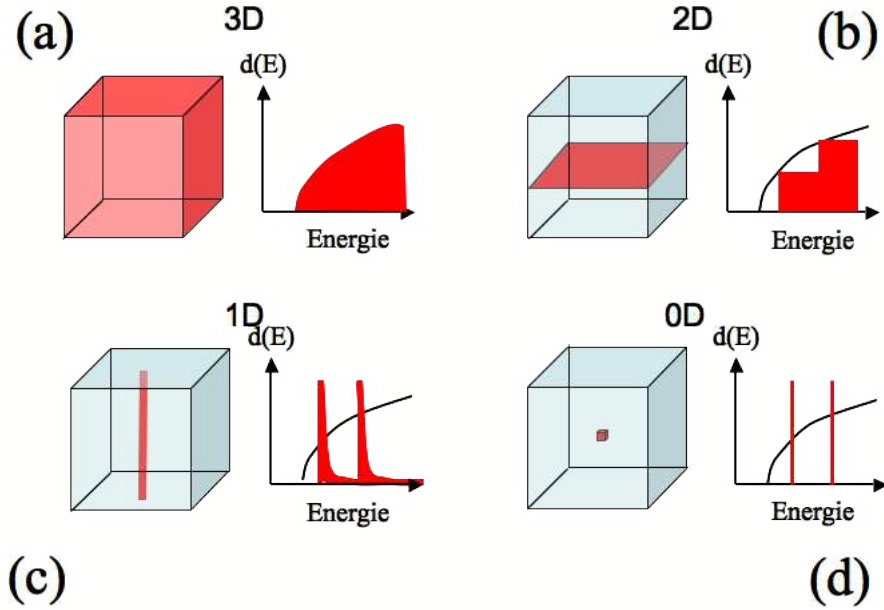


FIG. 1.2 – Evolution de la densité d'état avec le niveau de confinement quantique. fig (a) Aucun confinement, fig (b), confinement selon une direction (système 2D), fig (c) confinement selon deux directions (système 1D) et fig (d) confinement selon les trois directions (système 0D).

laser. Comme les niveaux des boîtes quantiques sont discrets, les recombinaisons non radiatives sont limitées [21]. Ainsi les échantillons de boîtes à haute densité peuvent être intégrés dans des diodes en vue d'applications lasers.

Des utilisations plus récentes exploitent l'analogie atome-boîte quantique dans le but d'appliquer des concepts développés en physique atomique à des systèmes susceptibles d'être intégrables dans des dispositifs optoélectroniques. Ainsi en plaçant des boîtes quantiques dans des cavités électromagnétiques qui peuvent être des micropilliers [24], des cristaux photoniques [47] ou des microdisques [28], on peut obtenir un régime de couplage faible ou fort entre une boîte quantique et un mode de la cavité électromagnétique. Le régime de couplage faible peut se manifester par l'effet Purcell, qui est la réduction du temps de vie radiatif des états excités de la boîte par la présence d'un mode de cavité résonant. Cet effet a été observé pour la première fois dans les micropilliers [24]. Le temps de vie est réduit d'un facteur 10 [24, 25]. De cette manière, le groupe de Yamamoto a par ailleurs réussi à réaliser une source de photons uniques indiscernables [48]. De telles sources sont très intéressantes pour la cryptographie quantique [23].

Si la cavité a un facteur de qualité suffisamment élevé, la boîte quantique peut être en régime de couplage fort avec le mode de cavité. Ce couplage fort a été mis en évidence expérimentalement avec des micropilliers [26], dans les cristaux photoniques [27] et dans les microdisques [28]. Les états propres du système boîte

quantique-mode de cavité ne sont plus factorisables et sont alors des entités mixtes photons-excitons.

Dans la section suivante, sera exposé le mode de synthèse de ces objets en s'intéressant plus particulièrement au boîte quantique d'InAs/GaAs.

1.2 Synthèse des boîtes quantiques

1.2.1 Réaliser un confinement tridimensionnel

Si on crée un îlot de semiconducteur A à faible gap (InAs par exemple) dans une matrice de semiconducteur B à fort gap (GaAs par exemple), le semiconducteur A est un piège pour les électrons de la bande de conduction et les trous de la bande de valence (voir Fig. 1.3) pour ce système de type I. Si les dimensions de cette inclusion sont de l'ordre de quelques dizaines de nm , on aura réalisé une boîte quantique présentant des niveaux discrets pour les états électroniques et les états de trous.

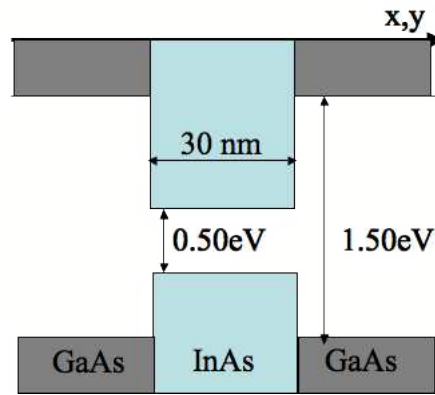


FIG. 1.3 – Principe de piègeage

La croissance de puits quantique (2D) est contrôlée depuis les années 70. Mais jusque vers le milieu des années 1980, cette maîtrise n'était pas suffisante pour réaliser des structures tridimensionnelles de taille nanométrique. Une des premières idées pour réaliser le confinement tridimensionnel a été d'appliquer à des puits quantiques un champ magnétique perpendiculaire au puits. Sakaki et Arakawa ont ainsi montré que les électrons précessent autour du champ magnétique et sont confinés dans le plan (x,y) [49]. Ces expériences nécessitent un fort champ magnétique (30 Tesla) dont on voudrait s'abstenir. La fabrication de boîtes quantiques s'est développée dans les années 80 [19]. Il existe plusieurs sortes de boîtes quantiques mais deux catégories principales se dégagent : les nanocristaux qui sont des boîtes quantiques colloïdales synthétisées par voie chimique et les boîtes quantiques épitaxiées.

Les nanocristaux actuels sont souvent des systèmes coeur-coquille (CdTe dans ZnS par exemple) où les charges libres sont confinées dans le coeur selon un schéma identique à la figure 1.3. La synthèse chimique permet de contrôler la taille du nanocristal, elle peut varier entre 1 et 10 *nm* avec une dispersion de 5 % [50]. Montés dans des structures hybrides organiques, les nanocristaux constituent la base de milieux actifs pour des LED et des lasers [51]. Le fait que la taille des nanocristaux soit contrôlable garantit la possibilité de choisir la fréquence d'émission de ces dispositifs. Ces nanocristaux sont aisément greffables à des molécules d'intérêt biologique. En étudiant la photoluminescence de ce nanocristal, il est possible de suivre le mouvement des molécules. Mais les nanocristaux présentent le phénomène de scintillement [52] : l'émission de ces objets peut être complètement bloquée par des phénomènes que l'on ne maîtrise pas encore, probablement par la présence de défauts qui constituent des pièges pour les charges libres [53]. Nous travaillons sur l'autre catégorie de boîtes : les boîtes quantiques épitaxiées. Dans la section suivante nous allons décrire leur synthèse.

1.2.2 Croissance auto-organisée de Stransky-Krastanov

Stransky et Krastanov ont prédit l'existence d'un mode de croissance dans lequel des structures de tailles nanométriques apparaissent spontanément [54]. En effet si on fait croître atome par atome un cristal A sur un autre cristal B, et si les paramètres de mailles de ces deux cristaux sont légèrement différents, l'arrangement cristallin de la couche déposée va s'adapter à l'arrangement cristallin du substrat tant que l'épaisseur de la couche est faible. Mais pour une épaisseur moyenne déposée supérieure à une valeur critique (1.7 monocouche pour InAs/GaAs), les contraintes élastiques accumulées sont trop importantes et l'arrangement cristallin du matériau A se réorganise spontanément. Des îlots de ce même matériau se forment à partir de la couche de mouillage de même composition (voir Fig. 1.4)[19].

Expérimentalement, on réalise ces échantillons par épitaxie par jet moléculaire (Molecular Beam Epitaxy) ou par déposition chimique organo-métallique en phase vapeur (Metal Organic Chemical Vapor Deposition MOCVD) [18]. Les premiers résultats prouvant l'existence de ce mode de croissance auto-organisée ont été obtenus au CNET en 1985 [55]. Pour pouvoir réaliser de tels objets, il faut néanmoins posséder une excellente maîtrise du dépôt de couches minces à la monocouche atomique près. Si les couches deviennent trop épaisses, les îlots ne se forment pas et des dislocations apparaissent dans le matériau massif. Une fois la couche de matériau A réorganisée en îlots, une nouvelle couche de matériau B est déposée en vue d'achever le confinement vertical.

Ces îlots ont typiquement une hauteur caractéristique de 5 *nm* et un diamètre de quelques dizaines de *nm*. Le mode de croissance de Stransky-Krastanov est aléatoire (voir Fig.1.5). La dispersion en taille de ces boîtes est de l'ordre de 10 %. Le point de nucléation de ces îlots n'est pas non plus contrôlé. Cependant, la

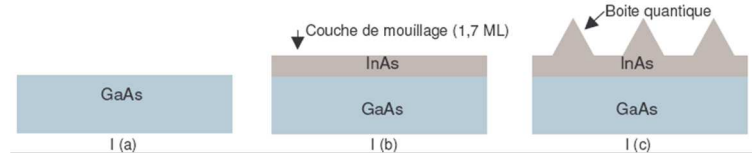


FIG. 1.4 – Les différentes étapes pour le mode de croissance de Stransky-Krastanov.

densité de boîtes peut varier entre 10^8 et 10^{11} boîtes par cm^2 . Elle est d'autant plus élevée que la couche de mouillage est épaisse.

La dispersion en position n'est pas déterminante si on veut utiliser les boîtes quantiques pour des application laser [56] mais le contrôle de la taille est primordial pour garantir sa monochromaticité. Par contre, le contrôle en taille et en position devient essentiel si on veut utiliser ces objets uniques intégrés dans des systèmes optoélectroniques. Plusieurs équipes ont travaillé sur cette croissance

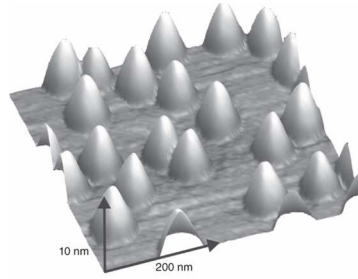


FIG. 1.5 – Image AFM d'un plan de boîte d'InAs.

contrôlée. Deux voies principales semblent se dégager. La première consiste à réaliser la croissance par MOCVD sur un substrat gravé selon un motif de pyramide tétraédrique inversée [57, 58] ou normale [59]. Une autre méthode utilise le fait que les boîtes quantiques vont préférentiellement croître au niveau de défauts que l'on peut créer par un flux focalisé d'ions Ga^+ (Focused Ion-Beam FIB) [60].

1.2.3 Etats électroniques du système

Etats électroniques des boîtes quantiques

Comme nous l'avons présenté dans le paragraphe 1.1.1, les matériaux semi-conducteurs III-V ont une structure de bande schématisée dans la partie gauche de la figure 1.1. Du fait des contraintes biaxiales existant dans la couche d'InAs, il y a une levée de dégénérescence entre la bande de trous lourds et la bande de trous légers en $\vec{k} = \vec{0}$ [61]. Ainsi la bande de trous légers est renvoyée vers les basses énergies et seuls les trous lourds seront à considérer pour décrire la

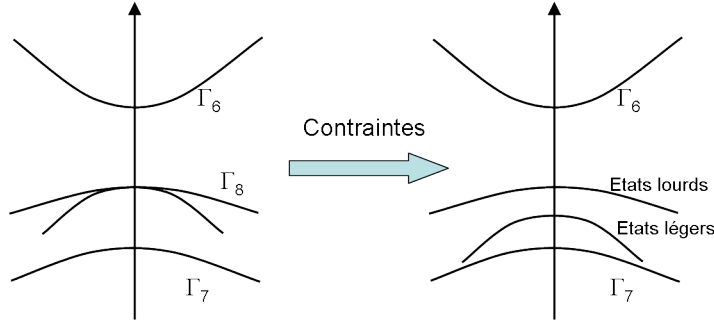


FIG. 1.6 – Effet de la contrainte sur la structure de bande des semiconducteurs III-V : à gauche dans les matériaux massifs non contraint, à droite en prenant en compte les contraintes.

structure électronique de la boîte quantique. Une description précise des boîtes quantiques est difficile car leur géométrie est mal connue et dépend des conditions de croissance [62]. Communément, on considère que ces boîtes quantiques ont une forme de lentille [63]. Il est important de remarquer qu’au cours de la croissance, il y a migration du GaAs dans la boîte quantique d’InAs, ce qui théoriquement doit changer le gap au sein de la boîte.

Cependant, un modèle simple nous permet de décrire les niveaux discrets de la boîte. Il consiste à considérer une boîte d’InAs pur placée dans une matrice de GaAs. Cette boîte a la forme d’un cône tronqué à base cylindrique. L’ellipticité n’est pas prise en compte. Dans cette approximation le potentiel de confinement possède une symétrie cylindrique $V(\rho)$. La projection du moment cinétique le long de l’axe (Oz), axe de croissance de l’échantillon, est alors un bon nombre quantique et permet d’indicer les états confinés.

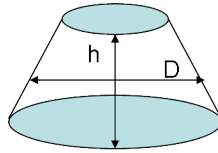


FIG. 1.7 – Représentation schématique d’une boîte.

Il existe différentes méthodes pour calculer les niveaux d’énergie des nanostructures semiconductrices. Nous présentons la méthode de la fonction enveloppe [42] qui utilise le formalisme de masse effective à une bande. Dans ce formalisme les fonctions d’onde des porteurs s’écrivent en terme de fonctions de Bloch (voir eq.1.4) par analogie avec le semiconducteur massif. Dans cette description, la partie onde plane en $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})$, traduisant l’invariance par translation, devient une fonction ψ_j lentement variable à l’échelle de l’arrangement cristallin, qui reflète la rupture de l’invariance par translation induite par le confinement quantique.

Dans une approximation où les états de boîte sont décrits à partir d'une seule bande, la fonction d'onde électronique associée à la bande j peut s'écrire :

$$\phi_{j,\vec{k}} = u_{j,\vec{k}} \psi_j \quad (1.12)$$

Comme nous considérons le voisinage du point Γ , la fonction atomique de la bande j devient :

$$u_{j,\vec{k}} \approx u_{j,0} \quad (1.13)$$

donc :

$$\phi_{j,\vec{k}} = u_{j,0} \psi_j \quad (1.14)$$

Si on considère une unique bande pour les électrons de conduction ou les trous, les états confinés décrits par $\phi(\vec{r})$ vérifient l'équation de Schrödinger :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) \phi(\vec{r}) = E \phi(\vec{r}) \quad (1.15)$$

$V(\vec{r})$ est le potentiel moyen vu par l'électron contenant les variations rapides et lentes à l'échelle du réseau. Dans ce cas, la partie enveloppe de la fonction d'onde électronique vérifie l'équation de Schrödinger réduite :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m^*} + V_l(\vec{r}) \right) \psi_j = E \psi_j \quad (1.16)$$

où m^* est la masse effective du porteur considéré (trou ou électron), \vec{p} la quantité de mouvement, V_l est la partie du potentiel lentement variable traduisant le confinement dans la boîte. On peut remarquer que dans le cas où ce potentiel est nul, ψ est réduit à une onde plane $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})$. On retrouve alors un état de Bloch. Les états enveloppes, solutions de l'équation 1.16, sont invariants par

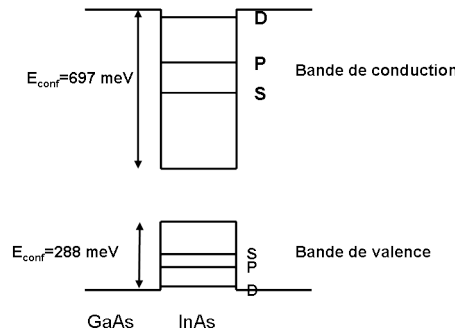


FIG. 1.8 – Structure de bande pour une boîte quantique.

symétrie cylindrique d'axe Oz (symétrie du potentiel $V(\vec{r})$). La projection de leur moment cinétique total selon l'axe (Oz) est donc quantifiée. Cette projection est

caractéristique de chaque état enveloppe. En suivant l'analogie boîte quantique-atome, les états enveloppes associés sont désignés par S, P et D qui correspondent respectivement à $|L_z|=0,1$ et 2.

L'énergie de confinement d'un niveau discret est mesurée à partir du bas de la bande de conduction pour les électrons et à partir du maximum de la bande de valence pour les trous. Les états confinés et les énergies de confinement des porteurs dans la boîte sont déterminés en résolvant l'équation 1.16. En considérant les discontinuités de bandes de conduction de 697 meV et de bandes de valence de 288 meV , Marzin et Bastard ont calculé les énergies de confinement des électrons et des trous pour une boîte de 20 nm de diamètre et de 1.5 nm de hauteur [61]. Les résultats sont présentés dans le tableau 1.3 pour les trois premiers états S, P et D.

états	électron (meV)	trou (meV)
S	420	133
P	472	165
D	571	219

TAB. 1.3 – Energie de confinement des électrons et des trous pour les 3 premiers états confinés pour un diamètre de 20 nm et une hauteur de boîte de 1.5 nm .

Les états de la couche de mouillage

Les boîtes reposent sur une couche de mouillage d'InAs avec une épaisseur d'environ 1 nm , comme nous l'avons présenté en 1.4. Cette couche est un puits quantique. Des porteurs libres peuvent être confinés dans ce puits à des énergies supérieures à celles de la boîte et les états électroniques correspondant, dont l'énergie des états électroniques est décrite par l'expression 1.11, ont une partie enveloppe de la forme :

$$\psi_{n,j}(\vec{r}) = \exp\left(i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}_{\parallel}\right) \Theta_{n,j}(z) \quad (1.17)$$

Il s'agit du produit d'un état délocalisé dans le plan (Oxy), $\exp i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}_{\parallel}$, et d'un état localisé selon l'axe (Oz), $\Theta_{n,j}$, avec j l'indice la bande étudiée, et n l'indice de l'état lié selon (Oz). Ainsi, pour chaque bande considérée, nous avons une série de niveaux correspondant aux énergies de confinement $E_{j,n}$ selon (Oz). A ces niveaux sont associés des continuums bidimensionnels dus au mouvement libre des porteurs dans le plan des couches.

En prenant le même offset de bande que pour le calcul des états de boîte (697 meV pour les électrons et -288 meV pour les trous), les énergies de confinement des premiers états liés du puits quantique pour différentes épaisseurs de la couche de mouillage sont présentées dans le tableau 1.4 [61]. En effet, au cours du processus de croissance, la couche de mouillage ne croît pas de manière homogène, il

épaisseur de la WL (en monocouche)	1	1,7	2
$E_{\text{Trou}} \text{ (meV)}$	235	180	160
$E_{\text{Electron}} \text{ (meV)}$	625	535	495

TAB. 1.4 – Energie de confinement du premier état lié de la couche de mouillage pour les trous et les électrons pour différentes épaisseurs du puits [64].

apparaît des terrasses de dimensions moyennes ($1200 \times 300 \text{ nm}$) avec un nombre de monocouches atomiques variables [65]. Ces défauts peuvent être vus comme des boîtes quantiques très aplaties. Ils ont des énergies de confinement variant entre celle d’une monocouche et celle de plusieurs monocouches. Catellani montre que cette dispersion de la hauteur de la couche de mouillage causée par la présence de terrasse génère une queue basse énergie dans la densité d’état de la couche de mouillage [66]. Pour des énergies plus grandes, on retrouve les états électroniques du substrat GaAs.

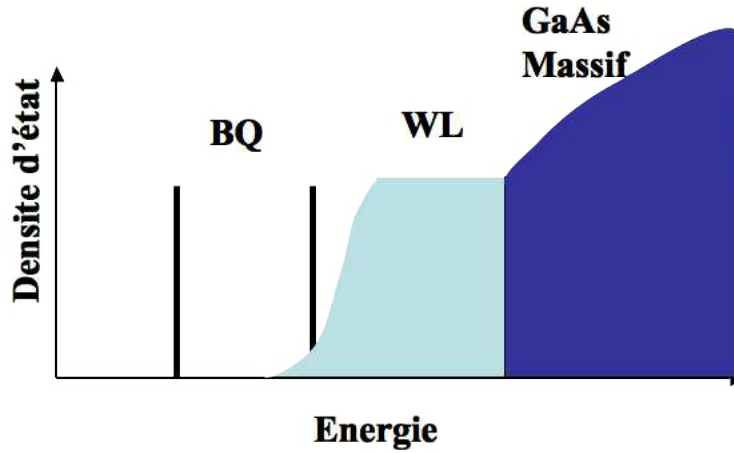


FIG. 1.9 – Structure de la densité d’états électroniques du système boîte quantique et de son environnement. Les niveaux discrets de la boîte quantique (BQ) apparaissent ainsi que le continuum bidimensionnel de la couche de mouillage (WL) et le continuum tridimensionnel du GaAs Massif.

Nous pouvons alors résumer ces considérations sur la figure 1.9 qui présente la densité des états de la boîte, des états de la couche de mouillage d’InAs (WL) et des états du substrat massif de GaAs pour les électrons de conduction. La structure de la densité d’états de trous pour la bande de valence est similaire.

1.2.4 Energie des états de paire électron-trou

Jusqu’à présent nous avons uniquement considéré des états à un corps : électron de la bande de conduction ou trou de la bande de valence. La représentation

adaptée à la description des excitations d'une boîte quantique neutre est une représentation à deux corps des états de paire électron-trou confinés dans la boîte.

Excitons ou paire électron-trou

Dans les boîtes quantiques, la première excitation est l'état où un trou est dans l'état S_h de la bande de valence et un électron de conduction dans l'état S_e . Pour cet état de paire électron-trou, l'énergie de liaison due à l'interaction coulombienne (quelques meV) est petite devant l'énergie de confinement (quelques centaines de meV).

$$E_{conf} \gg E_{coul} \quad (1.18)$$

Le terme coulombien peut être traité comme une perturbation et il produit juste un décalage des transitions. En d'autres termes, dans une boîte quantique, c'est le confinement qui fait la corrélation e-h et non l'interaction coulombienne comme c'est le cas pour l'exciton dans un matériau massif (voir section 1.1.1). Nous parlerons donc en général de paire électron-trou plutôt que d'exciton.

Continuum des états mixtes

Sur la figure 1.9, nous avons représenté la densité d'états électroniques de conduction de la boîte quantique dans son environnement. La densité des états de valence est analogue. Si on s'intéresse au spectre d'absorption de ce système, différentes sortes de transitions optiques peuvent exister.

- Si on cherche les transitions de plus basses énergie, ce sont des transitions entre les états liés de valence et les états liés de conduction de la boîte quantique. La paire électron-trou créée est alors complètement localisée dans la boîte quantique, c'est par exemple un état $S_e S_h$.
- Pour des énergies plus élevées, il peut y avoir transition d'un état électronique de valence de la boîte vers un état de conduction de la couche de mouillage, c'est à dire vers un état délocalisé. La transition complémentaire existe aussi, c'est celle qui couple des états délocalisés de valence de la couche de mouillage vers des états liés de conduction de la boîte quantique. La paire électron-trou créée est donc un état mixte où une entité est localisée et l'autre délocalisée, c'est par exemple un état $WL_e S_h$ ou un état $S_e WL_h$.
- Enfin les transitions faisant intervenir des photons de plus hautes énergies correspondent à des transitions entre états délocalisés de valence de la couche de mouillage et états délocalisés de conduction de la couche de mouillage. La paire électron-trou créée est totalement délocalisée. Ce sont des états $WL_e WL_h$.

Vasanelli *et al* ont calculé ce spectre d'absorption, il est représenté sur la figure 1.10 (trait plein). Sur cette figure apparaît également l'absorption de la couche de mouillage qui correspond au dernier type de transition créant des paires électrons trous de type $WL_e WL_h$. Nous voyons également les transitions entre

états liés de la boîte. Ce sont les pics étroits : on distingue la transition entre niveaux S notée $S_e S_h$ ou celle entre niveaux P notée $P_e P_h$, le nom utilisé est celui de la paire électron-trou créée. Enfin nous pouvons constater que le système absorbe de manière continue entre la raie $P_e P_h$ et la couche de mouillage. Ce fond d'absorption est la signature de transitions entre états liés de la boîte et états délocalisés du puit (ou le contraire) qui crée des états mixtes lié-délocalisé.

Il semble alors que d'après la figure 1.10 ce continuum des états mixtes puisse coexister aux mêmes énergies que les états de paires électron-trou totalement localisée de la boîte quantique sauf pour l'état de paire $S_e S_h$ qui reste isolé.

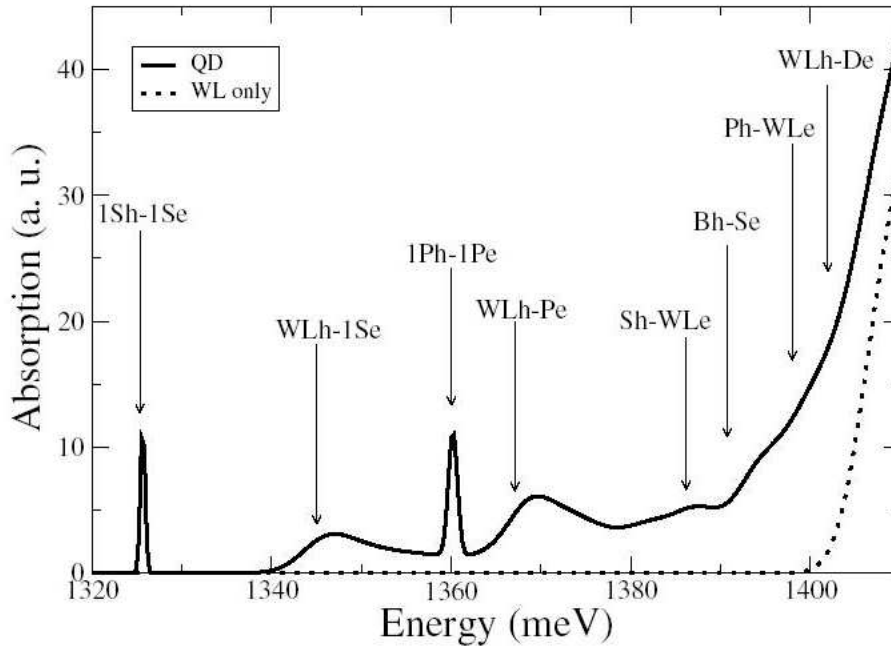


FIG. 1.10 – Calcul du spectre d'absorption d'une boîte quantique unique. Le trait en pointillé est l'absorption de la couche de mouillage seule en représentation paire électron-trou [1].

Modèle du système à deux niveaux

La présence d'états mixtes résonant avec les états $P_e P_h$ permet à Toda et Kammerer d'expliquer comment se peuplent les niveaux excités de la boîte [67, 32]. Du fait de cette résonance, les états $P_e P_h$ de la boîte sont peuplés très rapidement, mais il n'en est pas de même pour les états $S_e S_h$. Dans l'analogie boîte quantique/atome unique, seule la première excitation est un état faiblement perturbé par la matrice solide de la boîte quantique (voir Fig.1.10). Le modèle de l'atome artificiel se réduit donc à un système à deux niveaux où le niveau fondamental

$|g\rangle$ est le vide d'excitation de la boîte et le niveau excité $|e\rangle$ est l'état de paire $S_e S_h$. Ce dernier est le seul état protégé, au sens où il n'est pas résonant avec un continuum électronique. Les niveaux associés ne sont pas résonants avec des continus. Ainsi ce système à deux niveaux est capable de stocker de l'information, ou d'être en couplage fort avec des champs électromagnétiques. Dans la section suivante, nous détaillons comment l'environnement de la boîte influence ces états.

1.3 La boîte quantique dans son environnement

Après avoir détaillé la structure énergétique des états de paire de la boîte quantique, nous souhaitons déterminer les interactions susceptibles de dégrader la cohérence de ces états. Dans un premier temps, nous rappelons comment les états de paires de la boîte quantique se couplent avec le champ électromagnétique, puis comment ces états interagissent avec l'environnement solide.

1.3.1 Interaction avec un champ électromagnétique

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à la probabilité qu'un électron initialement dans un état $|\phi_i\rangle$ passe dans un état $|\phi_f\rangle$ en absorbant un photon. Dans l'approximation dipolaire électrique, l'hamiltonien décrivant ce couplage s'écrit :

$$H = -\vec{D} \cdot \vec{E} \quad (1.19)$$

où $\vec{D} = -e\vec{r}$ est l'opérateur dipôle avec \vec{r} , l'opérateur position de l'électron. D'après la règle d'or de Fermi, la probabilité de transition entre l'état $|\phi_i\rangle$ et l'état $|\phi_f\rangle$ est telle que :

$$P_{if} \propto |\langle \phi_i | H | \phi_f \rangle|^2 \delta(\epsilon_f - \epsilon_i - \hbar\omega) \quad (1.20)$$

ϵ_i et ϵ_f sont les énergies des états initial et final.

Transitions optiques permises

Considérons à présent les règles de sélection régissant les transitions optiques permises. Les états confinés de la boîte peuvent être décrits par le produit de deux termes dans le formalisme de la fonction enveloppe sur une seule bande j : la partie atomique $u_{j_i}(\vec{r})$ et la partie enveloppe $\psi_{j_i, L_i}(\vec{r})$ (voir 1.2.3) :

$$\phi_i = u_{j_i}(\vec{r})\psi_{j_i, L_i}(\vec{r}) \text{ et } \phi_f = u_{j_f}(\vec{r})\psi_{j_f, L_f}(\vec{r}) \quad (1.21)$$

où j_i est la bande initiale, L_i le moment cinétique total initial, j_f est la bande finale, L_f le moment cinétique total final. Si $\vec{\epsilon}$ est la polarisation du champ

électrique, l'élément de matrice dipolaire peut s'exprimer en deux termes :

$$\langle \phi_i | H | \phi_f \rangle = - \langle u_{j_i} | e \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | u_{j_f} \rangle \int \psi_{j_i, L_i}^*(\vec{r}) \psi_{j_f, L_f}(\vec{r}) d^3 \vec{r} - \delta_{j_i, j_f} \int \psi_{j_i, L_i}^*(\vec{r}) e \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} \psi_{j_f, L_f}(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (1.22)$$

Le premier terme est le terme de transition interbande, quant au second, c'est le terme de transition intrabande.

Transition intrabande

Dans ce terme, l'interaction dipolaire couple deux états enveloppes et laisse invariante la fonction atomique. Ces transitions ont donc lieu au sein de la bande de conduction ou au sein de la bande de valence avec $\Delta L_z = \pm 1$. On passe par exemple de l'état $|S\rangle$ à l'état $|P^+\rangle$ ou à l'état $|P^-\rangle$. Au cours de nos expériences, nous ne nous sommes pas intéressés à ces transitions (de faibles énergies) et nous nous focalisons sur les transitions interbandes.

Transition interbande

L'interaction dipolaire couple dans ce terme deux bandes différentes : bande de conduction et bande de valence. Dans l'expression 1.22, le terme de recouvrement des parties enveloppes oblige ces dernières à avoir la même symétrie par exemple S ou P . On appellera donc la première transition optique $S_e S_h$, la suivante $P_e P_h$ et ainsi de suite. La partie atomique du premier terme de l'équation 1.22 donne les règles de sélection en polarisation pour les transitions interbandes :

$$\Delta J_z = \pm 1 \quad (1.23)$$

En représentation paire électron-trou, cette transition correspond à la recombinaison ou la création d'une paire électron-trou. Le système passe d'un état de paire au vide d'exciton $|\oslash\rangle$ avec la même règle de sélection $\Delta J_z = \pm 1$.

Détermination des états brillants

En utilisant la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$ à l'ordre 0, la partie atomique du premier état de conduction S_e de la boîte quantique sera uniquement construite à partir de la bande Γ_6 . Ses états sont notés par exemple :

$$|e \uparrow\rangle \equiv \left| c, \frac{1}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle \text{ et } |e \downarrow\rangle \equiv \left| c, \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \quad (1.24)$$

Le deuxième membre des égalités décrit le niveau électronique, par exemple, $\left| c, \frac{1}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle$ désigne un état électronique issu de la bande de conduction avec un J_z égal à $-1/2$. De la même manière, la partie atomique du premier état de trou lourd S_h , noté h_h sera uniquement composée à partir de la bande des trous lourds. On les note :

$$|h_h \downarrow\rangle = \left| v, \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle \text{ et } |h_h \uparrow\rangle = \left| v, \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \quad (1.25)$$

Comme pour la description des états d'électrons les seconds membres d'égalité correspondent aux états électroniques associés. Ainsi l'état $|h_h \downarrow\rangle$ est un état de

trou lourd de J_z égal $-3/2$, cet état correspond à l'absence d'électron du niveau électronique issu de la bande de valence caractérisé par un $J_z +3/2$. En partant de ces quatre états, deux pour les états d'électron et deux pour les états de trou, on obtient pour l'état de paire $S_e S_h$, quatre états dégénérés. La valeur du J_z pour chaque état est donnée dans le tableau 1.5.

état de paire	J_z de la paire
$ e \uparrow, h_h \downarrow\rangle$	-1
$ e \uparrow, h_h \uparrow\rangle$	+2
$ e \downarrow, h_h \uparrow\rangle$	+1
$ e \downarrow, h_h \downarrow\rangle$	-2

TAB. 1.5 – Les différents états correspondant à $S_e S_h$ avec la projection du moment cinétique total (représentation trou).

Seul les états de paire possédant un J_z égal à ± 1 pourront être couplés à la lumière, les états $|e \uparrow, h_h \uparrow\rangle$ et $|e \downarrow, h_h \downarrow\rangle$ sont des états noirs car la valeur de la projection de leur moment cinétique total est trop grande ($J_z = 2$). Par contre les états $|e \uparrow, h_h \downarrow\rangle$ et $|e \downarrow, h_h \uparrow\rangle$ sont les états brillants. Ces deux états pourront absorber ou émettre des photons $\sigma+$ ou $\sigma-$.

En réalité, la symétrie cylindrique pour le potentiel de confinement est rarement réalisée dans les boîtes épitaxiées. Ces boîtes sont plutôt des ellipsoïdes aplatis. Cette rupture de symétrie fait que les états brillants $J = \pm 1$ ne sont alors plus des états propres. Les nouveaux états propres sont des combinaisons linéaires $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ de ces états. Non dégénérés, ils sont tous deux couplés au champ électromagnétique et donnent naissance à la structure fine de l'exciton dans les boîtes quantiques.

Nos travaux ne portant pas sur l'étude de la structure fine des états de boîte, nous n'aurons pas besoin d'une description plus détaillée des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ et nous nous contenterons de ce résultat.

La transition $S_e S_h$ correspond à la transition entre le vide d'excitation et l'état excité d'un système à deux niveaux (trois en tenant compte du spin). Ce système à deux niveaux est couplé avec la lumière mais également avec la matrice solide. Ce dernier couplage dégrade la cohérence de toute superposition d'état de ce système. Nous allons décrire les phénomènes de décohérence affectant les boîtes quantiques.

1.3.2 Phénomène de décohérence

Cette section porte sur les sources de décohérence des états de la boîte quantique. On s'intéressera particulièrement au premier état de paire excité $S_e S_h$ noté $|e\rangle$. L'état fondamental, noté $|g\rangle$, est le vide d'excitation. Le formalisme de la matrice densité permet de quantifier l'interaction du système à deux niveaux

couplé avec son environnement en introduisant la notion de décohérence. Nous détaillerons alors l'effet de l'émission spontanée sur la cohérence, puis celui de l'environnement solide.

Formalisme de la matrice densité

Considérons d'abord une boîte quantique isolée de son environnement matériel, constituée de deux niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$, où seule l'interaction avec le champ électromagnétique couple ces deux niveaux et crée des superpositions de ces deux états. L'évolution de ces deux états est alors corrélée quantiquement. On définit la matrice densité de ce système à 2 niveaux :

$$\rho = |\phi\rangle \langle\phi| = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} \\ \rho_{ge} & \rho_{ee} \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

Les éléments diagonaux de cette matrice décrivent les populations de l'état fondamental $|g\rangle$ (ρ_{gg}) et de l'état excité $|e\rangle$ (ρ_{ee}). Les termes non diagonaux sont les termes de cohérence traduisant la corrélation quantique existant entre les deux états $|g\rangle$ et $|e\rangle$. L'évolution de la matrice densité est donnée par l'équation de Liouville :

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] + i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (1.27)$$

avec $H = H_0 - \vec{D} \cdot \vec{E}$, \vec{E} est un champ électrique monochromatique tel que $\vec{E} = E_0 \vec{e} \cos(\omega t)$. Il y a deux types de couplage de l'atome avec le champ électromagnétique. L'absorption/émission induite est décrite par le terme $\vec{D} \cdot \vec{E}$ et l'émission spontanée est contenue phénoménologiquement dans $i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t}$. Le premier terme de couplage crée la corrélation quantique existant entre les deux états, le second contribue à la décohérence de la polarisation ainsi engendrée. L'hamiltonien du système s'écrit alors :

$$H = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \Delta_{ge} \\ \Delta_{ge}^* & 0 \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

où $\hbar\omega_0$ est l'énergie du niveau excité $|e\rangle$ et Δ_{ge} le couplage dipolaire. La relaxation de la cohérence $\frac{\partial \rho}{\partial t}$ s'écrit [68] :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \begin{pmatrix} \frac{\rho_{ee}}{T_1} & -\frac{\rho_{ge}}{T_2} \\ -\frac{\rho_{ge}^*}{T_2} & -\frac{\rho_{ee}}{T_1} \end{pmatrix} \quad (1.29)$$

- T_1 est le temps de vie de la population de l'état excité.
- T_2 est le temps de vie de la cohérence ou temps de vie de la polarisation du système.

En simplifiant la phénoménologie, si une superposition cohérente d'états a été créée par le couplage dipolaire, la partie excitée de cette superposition relaxe au bout d'un temps T_1 vers l'état fondamental par émission spontanée. Ainsi la durée

de vie de la cohérence est limitée par l'émission spontanée du système. C'est la limite radiative de la décohérence, on montre que [68] :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} \quad (1.30)$$

Nous nous intéressons à la recombinaison du premier état excité de la boîte $|e\rangle$ vers l'état $|g\rangle$. Dans une vision, la boîte rayonne un champ électromagnétique (émet un photon) au cours de la recombinaison de la paire. Dans cette approche l'intensité émise vaut [68] :

$$I_{ray} \propto |\ddot{\vec{p}}|^2 \quad (1.31)$$

où \vec{p} est le dipôle associé au système. Ce moment dipolaire est calculé à partir de la matrice densité ρ et de l'opérateur dipôle \vec{D} :

$$\vec{p} = Tr(\vec{D}\rho) \quad (1.32)$$

La résolution de l'équation de Liouville dans le domaine spectral donne pour les termes non diagonaux (si $\Delta_{ge} = \Omega_r e^{i\omega t}$) :

$$\rho_{ge}(\omega) = -\frac{i}{2} \frac{\Omega_r}{\Gamma + i(\omega - \omega_0)} \quad (1.33)$$

La valeur moyenne du dipôle sera alors.

$$\langle \vec{p} \rangle = Tr(D\rho) \propto \frac{\Omega_r}{\Gamma + i(\omega_0 - \omega)} \quad (1.34)$$

et l'intensité émise par ce dipôle est donnée par [68] :

$$I(\omega) \propto \frac{\Omega_r^2}{\Gamma^2 + (\omega_0 - \omega)^2} \quad (1.35)$$

Le spectre du rayonnement émis par l'atome lors de sa recombinaison a donc un profil lorentzien de largeur à mi-hauteur $\frac{2\hbar}{T_2} = \frac{\hbar}{T_1}$ qui est aussi le taux de relaxation de la cohérence. En considérant le cas d'une boîte isolée, nous nous plaçons ainsi dans un cas idéal, l'émission spontanée est la seule source limitant la cohérence. C'est la limite radiative, le temps de cohérence de ce système ne peut pas être plus long.

Mesurer la décohérence

Pour les boîtes quantiques InAs, les temps de vie du premier état excité est de l'ordre d'une ns [19]. La largeur homogène du signal émis par la boîte devrait être d'environ $1 \mu eV$. Ces largeurs de raie peuvent être atteintes à basse température et sous excitation résonante, mais dans des expériences de micro-photoluminescence, les largeurs mesurées sont bien supérieures ($100 \mu eV$). Cette

différence provient de l'environnement cristallin qui affecte la décohérence (phonons, pièges électrostatiques). Le couplage existant entre la boîte quantique et l'extérieur est pris en compte phénoménologiquement en ajoutant dans l'équation 1.29, un terme de perturbation incohérente agissant uniquement sur la cohérence et non sur les populations. Le taux de relaxation de la cohérence devient :

$$\Gamma = \Gamma_s + \Gamma_d \quad (1.36)$$

On peut réécrire l'équation 1.36 dans le domaine temporel et obtenir :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (1.37)$$

On a maintenant :

$$T_2 < 2T_1 \quad (1.38)$$

L'étude du spectre d'émission de la transition fondamentale de la boîte permet de quantifier la décohérence provoquée par l'environnement cristallin en comparant T_2 au temps de vie radiatif (voir 1.3.2). Mais l'effet de l'environnement peut apparaître d'une autre manière. Dans la section suivante, nous allons décrire les différents couplages qui peuvent exister et qui remettent en question le modèle du système à deux niveaux pour la boîte quantique.

1.3.3 Couplage avec les phonons

Description des phonons

Le phonon est le quantum d'excitation collective d'un réseau cristallin caractérisé par une énergie et un vecteur d'onde \vec{q} . Pour GaAs massif, les modes de phonon ont été étudiés expérimentalement par diffusion inélastique de neutrons [18]. GaAs et InAs ont deux atomes par maille, il y a deux classes de vibrations. Dans le cas des faibles vecteurs d'onde \vec{q} , qui est celui qui nous intéressera, si les deux atomes de la maille élémentaire oscillent en phase, c'est un mode acoustique de vibration. Si les deux atomes oscillent en opposition de phase, c'est un mode optique. Pour chaque type de phonon (optique ou acoustique) il y a trois types de vibration : deux transverses (vibration orthogonale au vecteur d'onde \vec{q}) et un longitudinal (vibration parallèle à \vec{q}). Pour les petits vecteurs d'ondes \vec{q} , la relation de dispersion des phonons acoustiques est linéaire :

$$E_{ac} = \hbar c_s q \quad (1.39)$$

où c_s est la vitesse du son dans le semiconducteur.

Pour les phonons optiques la dispersion est beaucoup plus faible (5-6 meV sur la première zone de Brillouin) et en centre de zone leur vitesse de groupe est nulle. Puisque nous travaillerons en centre de zone, cette faible dispersion permet de considérer que l'énergie du phonon optique est indépendante du vecteur \vec{q} , le phonon optique est quasiment monochromatique dans GaAs. Son énergie vaut approximativement 36 meV.

Couplage avec les phonons

Phonons acoustiques

Les vibrations acoustiques sont des oscillations en phase du cristal à l'échelle de la cellule élémentaire (au voisinage de $\vec{q} = \vec{0}$). Le couplage de l'électron avec les phonons acoustiques peut se manifester par deux types d'interaction : l'effet piezoélectrique et le potentiel de déformation. Le premier effet est provoqué par le couplage au champ électrique engendré par les contraintes au sein d'un cristal partiellement polarisé. Pour le second phénomène, les phonons acoustiques perturbent l'arrangement cristallin vu par les électrons. Cette modification du potentiel périodique va provoquer un réarrangement de la structure de bande. C'est ce même effet qui lève la dégénérescence entre les états lourds et les états légers de la bande de valence dans les semiconducteurs [18]. Le terme de couplage contient un terme en $\vec{q} \cdot \vec{e}_i$ où \vec{e}_i est la direction du déplacement atomique engendré par le phonon. Le couplage sera donc maximal avec les modes longitudinaux.

Phonons optiques

Comme pour les phonons acoustiques, il existe 2 termes de couplage entre phonons optiques et électrons. Le premier est le terme de potentiel de déformation (le réarrangement atomique modifie la structure de bande), ce terme n'est pas dominant. Le second terme, que l'on considérera par la suite comme principal, est le terme d'interaction de Fröhlich, qui est analogue à l'effet piezoélectrique [18]. Cet effet n'apparaît que dans les solides polaires ou partiellement ioniques, les atomes de charges partielles différentes oscillent en opposition de phase et vont générer un champ macroscopique qui se couple avec les électrons du solide.

Diffusion des états discrets de la boîte par les phonons

L'énergie typique séparant les niveaux discrets de la boîte quantique est d'environ 50 meV (pour une boîte quantique de diamètre 20 nm et de hauteur 1.5 nm). La diffusion d'un état de la boîte vers un autre n'est possible qu'en cas de résonance avec l'énergie d'un phonon acoustique ou optique. Les phonons acoustiques ne sont pas assez énergétiques pour coupler 2 états discrets et les phonons optiques (d'énergie 36 meV) doivent être résonants avec cette transition. On peut s'attendre à un ralentissement des phénomènes de relaxation (Bottleneck effect) ou, au moins, à une réduction du couplage entre niveaux discrets et phonons. Or, expérimentalement, on montre que les niveaux discrets de la boîte quantique, l'état de paire $S_e S_h$ inclus, sont couplés aux phonons. Nous allons résumer dans la partie suivante les principales manifestations de ce couplage original.

1.4 Décohérence de premier état excité de la boîte quantique $S_e S_h$

Nous allons nous intéresser aux sources de décohérence affectant le premier état excité $|e\rangle$ de la boîte

Deux types d'interaction se distinguent suivant qu'elles provoquent ou non une diminution de population de l'état excité. Le premier type d'interaction introduit un canal de fuite de l'état excité et réduit à la fois les temps de relaxation de population et de cohérence T_1 et T_2 . Le second, par des processus qui n'affectent que la phase de l'état excité, ne modifie pas les populations ; on parle alors de processus purement déphasants. Par exemple une fluctuation du champ électrique ou magnétique dans l'environnement de la boîte induit un décalage de la raie sans modifier le temps de recombinaison de la paire électron-trou. Les populations des deux états ne sont pas modifiées par ce couplage.

Un autre type de couplage peut induire un déphasage pur sans changer les populations des deux états : les transitions virtuelles à 2 étapes : absorption et émission d'un phonon de même énergie. Les populations initiales et finales sont les mêmes, mais la phase des deux états est modifiée par ce passage par un état d'énergie différente [69]. Nous allons donc détailler la nature des déphasages affectant les états discrets de la boîte.

1.4.1 Couplage fort avec les phonons optiques

Les travaux de Hameau [70, 2] et Verzelen [3] ont montré qu'il existait un couplage fort entre les phonons optiques longitudinaux et les états discrets de la boîte via l'interaction de Fröhlich.

Ce couplage fort a été mis évidence par Hameau *et al* [70]. Par des expériences de magnétoabsorption dans l'infrarouge sur un ensemble de boîtes dopées, ils sondent les transitions intrabandes pouvant exister à partir de l'état S_e . La figure 1.11 représente l'évolution expérimentale de l'absorption en fonction du champ magnétique appliqué. La figure 1.12 correspond à l'évolution théorique des premiers niveaux électroniques de la boîte en fonction du champ magnétique sans tenir compte du couplage de Fröhlich. On peut voir sur cette dernière figure, que le champ magnétique \vec{B} permet de déplacer par effet Zeeman les niveaux P (P_{+1} et P_{-1}) de la boîte de telle manière que les états $(S_e, 1ph)$ et $(P_{-1}, 0ph)$ ou $(S_e, 2ph)$ et $(P_e, 0ph)$ soient résonants. Le spectre d'absorption de l'état S_e est enregistré et montre un anticroisement entre les niveaux $(S_e, 1ph)$ et $(P_{-1}, 0ph)$. Deux autres anticroisements apparaissent à des énergies plus élevées (67 meV et 87 meV) entre les niveaux $(S_e, 2ph)$, $(P_{+1}, 1ph)$ et $(P_{-1}, 2ph)$. Ces anticroisements sont la preuve de l'existence d'un couplage fort entre les états électroniques de la boîte et les phonons optiques. Les états stationnaires ne sont plus factorisables en un produit $|etat\ de\ la\ boîte\rangle |nombre\ de\ phonons\rangle$. Les nouveaux états stationnaires sont des polarons, des combinaisons linéaires de phonons optiques et d'états de

boîte.

Olivier Verzelen a montré de manière théorique [3] que le couplage fort mélangeait les états de paires électron-trou ($S_e S_h, 1ph$) avec des états ($P_e S_h, 0ph$) ou ($S_e P_h, 0ph$). Ses résultats sont présentés sur la figure 1.13. Pour accorder l'énergie, au lieu de faire varier le champ magnétique, Verzelen change le rayon de la boîte. On peut

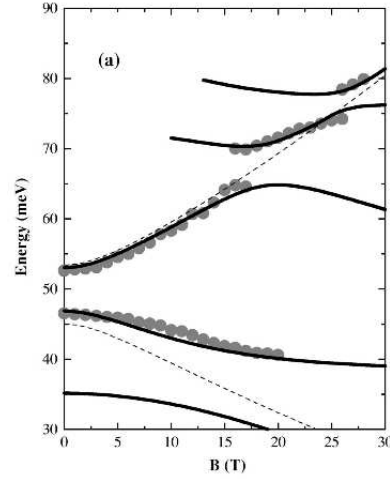


FIG. 1.11 – Evolution du spectre d'absorption de l'état S_e en fonction du champ magnétique [2]. Les points correspondent aux résultats expérimentaux et les traits pleins la modélisation théorique [2].

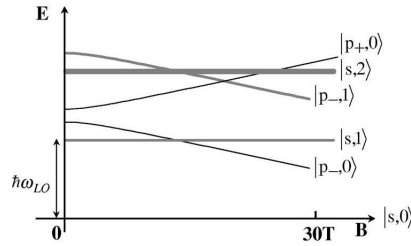


FIG. 1.12 – Evolution théorique des premiers niveaux de boîte en fonction du champ magnétique sans tenir compte du couplage de Fröhlich.

voir sur la figure 1.13 que le premier état polaronique (de plus basse énergie) est quasiment identique à l'état ($S_e P_h, 0ph$). Ainsi le couplage fort ne crée pas d'états proches en énergie de ($S_e S_h, 0ph$) qui reste isolé. Verzelen montre que, comme la composante "phonons" de ces polarons a une durée de vie finie (3 ps dans GaAs massif), elle permet des relaxations des états polaroniques (à composante P) vers le premier état polaronique de la boîte. Or cet état a une forte composante S_e . Les polarons ouvrent ainsi un canal de relaxation des états électroniques excités

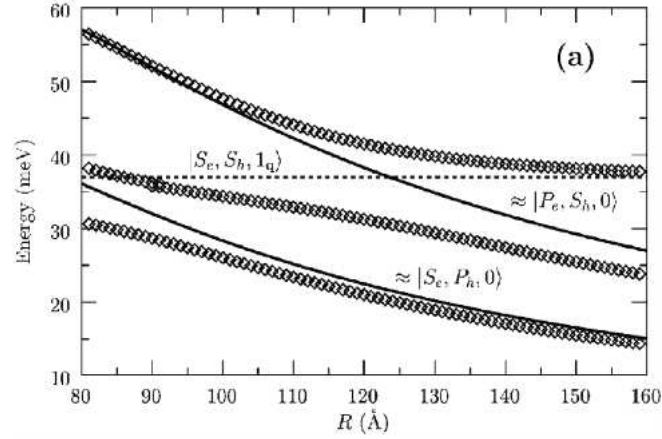


FIG. 1.13 – Couplage fort entre états de paire de la boîte et phonon optique (ligne à motif). L'énergie de référence est l'énergie de l'état factorisé ($S_e S_h, 0ph$) dépendant du rayon R de la boîte. En traits pleins sont représentés les différents états sans couplage [3].

(de type P_e) vers le premier état excité S_e [35]. A basse température, les phonons optiques sont très peu présents et ne couplent pas ce dernier niveau aux polarons. Ils influencent donc peu la cohérence du premier état excité $S_e S_h$ de la boîte quantique à basse température. Par contre les phonons acoustiques affectent cet état, le spectre d'émission de l'exciton présente des ailes de phonons acoustiques.

1.4.2 Ailes de phonons acoustiques

Manifestation expérimentale

Dans les boîtes InAs/GaAs, les ailes de phonon ont été mises en évidence par Favero au cours de sa thèse [34]. Expérimentalement, les boîtes très larges spectralement peuvent présenter un profil non lorentzien, à basse température, avec une composante du côté basse énergie. Quand la température passe de 10K à 100K, on constate une symétrisation de ce profil, avec une composante du côté haute énergie (voir Fig. 1.14). Un ajustement lorentzien ne peut convenir pour les raies obtenues. Ces faits expérimentaux peuvent s'interpréter dans le cadre du formalisme de Huang-Rhys développée pour traiter l'interaction électron-phonon dans le cadre d'électrons localisés [71]. C'est un modèle de bosons indépendants.

Formalisme de Huang Rhys

Le formalisme de Huang-Rhys traite le couplage à l'ordre 1 entre un électron et les modes de vibration acoustique du cristal. On se place dans le cas où les niveaux de l'électron ou de trou ont une distance énergétique grande devant l'énergie des phonons. Dans ce formalisme seul l'exciton fondamental $|e\rangle$ sera considéré, on ne tient pas compte des niveaux P [71]. En considérant uniquement le couplage aux phonons acoustiques via le potentiel de déformation, l'hamiltonien total du

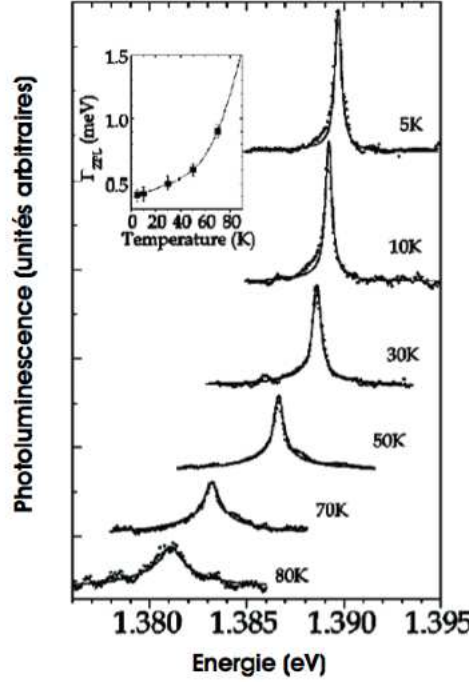


FIG. 1.14 – Accord théorie expérience pour les ailes de phonons d’une boîte quantique. En encart, l’évolution en température de la largeur spectrale de la raie centrale lorentzienne [4].

système excitons $[|e\rangle + \text{réservoir de phonons acoustiques}]$ s’écrit :

$$H = \hbar\omega_0 |e\rangle \langle e| + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} c_{\vec{q}}^+ c_{\vec{q}} + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} (f_{\vec{q}}^* c_{\vec{q}}^+ + f_{\vec{q}} c_{\vec{q}}) \quad (1.40)$$

le premier terme est l’énergie de la paire électron-trou, qui vaut $\hbar\omega_0$ si le système est dans l’état $|e\rangle$, le deuxième correspond à l’énergie des phonons en considérant tous les vecteurs d’onde \vec{q} possibles. Le dernier terme traduit le couplage entre la paire électron-trou et les phonons acoustiques via le potentiel de déformation. On suppose que ce couplage est linéaire en $c_{\vec{q}}$ et $c_{\vec{q}}^+$, opérateurs destruction et création de phonons acoustiques. Le terme de couplage contient l’élément de matrice $f_{\vec{q}} = \langle e, 0 | H_{\text{exciton-phonon}} | e, 1_{\vec{q}} \rangle / \hbar\omega_{\vec{q}}$.

Avec le changement de variables suivant :

$$a_{\vec{q}} = c_{\vec{q}} + f_{\vec{q}}^* \quad (1.41)$$

L’hamiltonien total se réécrit :

$$H = \hbar\omega_0 |e\rangle \langle e| + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} a_{\vec{q}}^+ a_{\vec{q}} \quad (1.42)$$

On retrouve l’hamiltonien d’un ensemble d’oscillateurs harmoniques indépendants. L’état fondamental $|\tilde{e}\rangle$ de ce système de bosons indépendants est défini pour tout

\vec{q} par :

$$a_{\vec{q}}|\tilde{e}\rangle = 0 \quad (1.43)$$

L'expression de l'état $|\tilde{e}\rangle$ est alors donné par [71] :

$$|\tilde{e}\rangle = \exp\left(-\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^*/2\right) \exp\left(\sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} f_{\vec{q}}^* c_{\vec{q}}^+\right) |e, 0\rangle \quad (1.44)$$

qui peut s'écrire sous la forme factorisée :

$$|\tilde{e}\rangle = |\Psi_{phonons}\rangle \otimes |e\rangle \quad (1.45)$$

De fait, il n'y a pas d'intrication entre l'exciton et les phonons.

Ainsi, l'état fondamental est une combinaison linéaire d'états à nombre de phonons n variant entre 0 et l'infini. L'état à 0 phonon a le poids le plus important, ce poids diminuant avec la valeur de n . Nous avons un état excitonique habillé par les phonons. L'état décrivant le vide d'excitation a la même structure.

A l'aide de ce formalisme nous pouvons comprendre les résultats présentés dans la thèse d'Ivan Favero. Il peut y avoir transition de l'état de paire $|\Psi_{phonons}\rangle \otimes |e\rangle$ au vide d'excitation $|\Psi_{phonons'}\rangle \otimes |g\rangle$ sans que l'énergie de états de phonons ne changent. Cette transition ne fait intervenir énergétiquement aucun phonon, c'est la raie à 0 phonon (ZPL pour Zero Phonon Line). A basse température, les modes de phonons acoustiques sont très peu peuplés, ainsi l'état excité est principalement à 0 phonon. Pendant la recombinaison amenant la boîte de l'état $|e\rangle$ à l'état $|g\rangle$ le système peut arriver sur un état habillé de $|g\rangle$ avec 1, 2 ou 3 phonons. L'émission de photon se fera donc à une énergie plus basse, elle sera accompagnée de l'émission d'1, 2 ou 3 phonons acoustiques. Du côté basse énergie de la raie ZPL, une aile de phonon apparaît.

Quand la température du milieu s'élève, les modes de phonons acoustiques se peuplent. Ainsi des phonons peuvent être absorbés par l'état $|e\rangle$ durant la recombinaison. Il apparaît donc une aile du côté haute énergie correspondant au photon émis lors de la transition entre l'état excité à plusieurs phonons et l'état fondamental. L'intensité de cette aile est d'autant plus importante que les modes de phonons acoustiques sont peuplés. Ainsi le profil asymétrique à basse température devient symétrique pour des températures supérieures à 50 K (voir Fig. 1.14). L'analyse de l'évolution de l'aile de phonon du côté haute énergie permet de déduire l'énergie des phonons qui se couplent efficacement à la boîte : 4 meV.

Ainsi, la présence d'ailes de phonons dans le spectre d'émission d'une boîte quantique unique prouve l'existence d'un couplage entre les phonons acoustiques et le premier état excité de la boîte. Dans ce formalisme, la raie à 0 phonon ne doit pas être perturbée par ce couplage. Cependant, nous allons voir que d'une part, les largeurs ZPL mesurées expérimentalement ne correspondent pas à la limite radiative et d'autre part, elles présentent une dépendance en température.

Elargissement de la raie à zéro phonon

Résultats expérimentaux

Différents groupes ont constaté que la largeur spectrale de la raie à 0 phonon ne correspondait pas à la limite radiative calculée à partir des temps de vie de l'exciton et ont étudié l'élargissement de cette raie avec la température [5, 72, 73]. On mesure un élargissement qui peut être décrit par l'expression :

$$\Gamma = \Gamma_0 + aT + b \exp(-\hbar\omega/kT) \quad (1.46)$$

avec un coefficient a variant entre 0.1 et 5 $\mu\text{eV.K}^{-1}$ et un coefficient b valant une dizaine de meV . Ce dernier fait semble indiquer la présence d'un couplage entre l'état $|e\rangle$ et les phonons, différent du couplage produisant les ailes de phonons étudiées précédemment.

Rôle des phonons optiques

Le terme exponentiel $b \exp(-\hbar\omega/kT)$ n'intervient que pour des températures supérieures à 40 K . Les phonons optiques sont probablement responsables de cet élargissement. L'énergie d'activation de ce mécanisme, comprise entre 21 et 30 meV [72], correspond à une énergie inférieure à l'énergie d'un phonon optique pour InAs (32 meV) ou GaAs (36 meV).

Ce phénomène peut se comprendre à l'aide du couplage fort exciton-phonon optique et avait été prédit au cours des travaux d'Olivier Verzelen [3]. En effet les entités mixtes résultant de ce couplage, les polarons, ont des niveaux d'énergie qui sont différents des états excitoniques purs. Dans ce modèle, le taux de diffusion de l'exciton fondamental vers les états polaroniques est donné par :

$$\Gamma(T) = \frac{\hbar}{\tau_{LO}} \sum_i |\beta_i^2| \exp\left(-\frac{\epsilon_{|e_i\rangle} - \epsilon_{|e\rangle}}{kT}\right) \quad (1.47)$$

où β_i^2 est la composante de l'état $S_e S_h, 1ph$ dans le polariton d'énergie $\epsilon_{|e_i\rangle}$, τ_{LO} est le temps de vie du phonon optique dû à l'anharmonicité des phonons optiques, $\epsilon_{|e_i\rangle}$ sont les énergies des niveaux polaroniques pouvant se coupler au niveau fondamental $|e\rangle$ d'énergie $\epsilon_{|e\rangle}$. Interviennent dans l'exponentielle, non plus l'énergie du phonon LO mais les énergies de polariton qui peuvent être inférieures à celles des phonons.

D'après l'équation 1.47, le taux de décohérence est majoré par $\frac{\hbar}{\tau_{LO}}$. Ce taux d'amortissement des phonons optiques a été mesuré dans les puits quantiques et vaut 0.15 meV à 10 K [74]. Dans les boîtes quantiques, les valeurs du coefficient b , défini dans l'équation 1.46, sont de l'ordre de quelques meV à 10 K [5]. Ces valeurs sont trop élevées par rapport $\frac{\hbar}{\tau_{LO}}$. Ainsi, ce modèle de couplage aux états polaroniques est insuffisant pour expliquer une telle décohérence.

Une autre approche consiste à considérer un terme de couplage type Fröhlich quadratique entre exciton et phonons, avec absorption puis émission d'un phonon

optique. La boîte passe par un état virtuel à 1 phonon. Ce couplage donne le bon ordre de grandeur pour le coefficient mais n'explique pas une énergie d'activation inférieure à l'énergie des phonons optiques.

Il semble donc que l'interprétation du terme exponentiel de la largeur à mi-hauteur de la raie à zéro phonon doive considérer à la fois ces deux phénomènes. Il y a diffusion thermoactivée des états excitoniques vers des états polaroniques. Nous allons à présent exposer la nature des processus permettant d'expliquer le terme linéaire qui apparaît à basse température. Le fait que ce terme soit linéaire en température peut être la signature d'un couplage avec les phonons acoustiques.

Influence des phonons acoustiques

Un couplage au premier ordre entre la boîte quantique et les phonons acoustiques permet d'expliquer les ailes de phonons acoustiques. Le processus quadratique d'absorption puis d'émission d'un phonon acoustique avec passage par un état excité est un processus virtuel déphasant. En incluant ces termes quadratiques dans le modèle de Huang Rhys, Zimmermann parvient à calculer l'effet sur la cohérence de ces processus d'ordre 2. Il arrive à prédire un élargissement en température des raies à zéro phonon mesurées par Bayer [73]. Mais ce modèle ne parvient pas à expliquer la disparité des élargissements mesurés par différents groupes [32] sur plus d'un ordre de grandeur. Il semble donc que nous devions étudier des couplages plus subtils, où la température intervient, mais de façon indirecte.

Fluctuation de l'environnement électrostatique

Nous avons mentionné les imperfections de la couche de mouillage. Celles-ci permettent le piégeage de porteurs au voisinage de la boîte (défauts d'interface, accepteurs, donneurs). Ces charges induisent un déplacement de la raie excitonique par effet Stark. Ainsi la température peut activer le piégeage et le dépiégeage de ces charges et ainsi faire fluctuer la position de la raie, c'est le phénomène de *diffusion spectrale*. Ce phénomène est commun à beaucoup de domaine de la physique : Résonance Magnétique Nucléaire, physique des liquides, physique atomique etc...

Les premières preuves expérimentales d'un tel phénomène dans les boîtes quantiques ont été mises en évidence dans les structures colloïdales [75] puis dans les boîtes auto-assemblées [76, 40, 10]. Dans certains cas, les temps de fluctuations des charges sont suffisamment grands devant le temps de réponse du détecteur pour que l'on puisse voir la raie excitonique évoluer au cours du temps par saut. Ces différents travaux mettent en évidence le rôle de la température qui active les fluctuations des charges environnantes. Mais le phénomène de diffusion spectrale peut se manifester d'une autre façon : si les fluctuations sont rapides devant le temps de détecteur, nous voyons un élargissement inhomogène de la raie. La

diffusion spectrale pourrait alors expliquer l'élargissement du spectre d'émission d'une boîte quantique unique à basse température

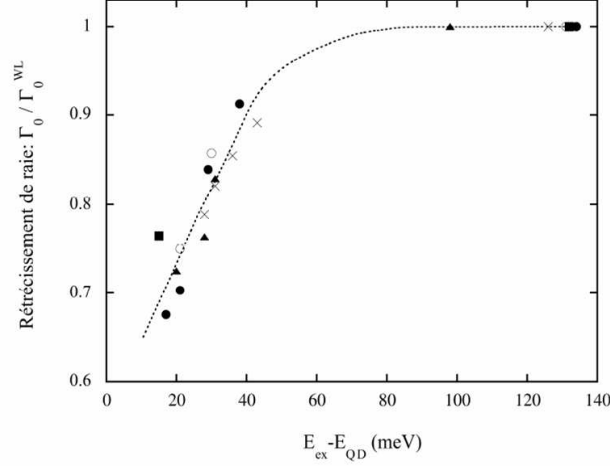


FIG. 1.15 – Evolution du rapport Γ_0/Γ_0^{WL} pour différentes boîtes quantiques. Chaque symbole correspond à une boîte quantique. E_{QD} est l'énergie de l'exciton de la boîte quantique étudiée. Γ_0 est la largeur à mi-hauteur extrapolée à 0K pour un pompage à l'énergie E_{ex} . Γ_0^{WL} est la largeur à mi-hauteur extrapolée à 0K pour un pompage dans la couche de mouillage [5].

Ainsi Cécile Kammerer, au cours de sa thèse [32], a mis en évidence le rôle que jouait l'énergie de pompage sur la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon d'une boîte quantique unique. Il apparaît sur la figure 1.15 que cette largeur est d'autant plus faible que l'excitation est résonante [32]. En pompant à haute énergie, l'absorption est plus efficace, ce qui génère plus de charges au voisinage de la boîte. Elle est donc plus perturbée [36, 13]. Ainsi, sous excitation résonante, le phénomène de diffusion spectrale est réduit, les largeurs de raies mesurées sont proches de la limite radiative qui est d'environ $1 \mu eV$ [77, 78, 79].

En conclusion, l'élargissement à basse température semble être relié à la présence de charges fluctuantes, mais le mécanisme permettant d'expliquer quantitativement les largeurs de raie à basse température reste encore à décrire. Dans la suite de ce mémoire nous allons montrer le rôle essentiel que joue le phénomène de diffusion spectrale sur la décohérence du premier état excité d'une boîte quantique.

1.5 Conclusion

Les boîtes quantiques auto-assemblées de semiconducteur présentent des niveaux d'énergie discrets tel un atome artificiel. Si on veut utiliser ces niveaux

discrets pour stocker de l'information ou créer une source de phonon unique, les couplages avec l'extérieur doivent être limités au maximum. Dans ce premier chapitre, nous avons vu que seule la première excitation de la boîte quantique était isolée des continuums délectroniques du système. Cependant, ce premier état excité semble être en interaction avec l'environnement solide, puisque le profil de raie de la transition présente des ailes de phonons. De plus, les largeurs de la raie à zéro phonon mesurées sont souvent très supérieures à la limite radiative. Nous avons vu que ni les phonons acoustiques, ni les phonons optiques ne pouvaient expliquer cette largeur et son évolution à basse température. Ce travail de thèse vise à montrer que c'est le phénomène de diffusion spectrale qui produit la décohérence du premier état excité de la boîte quantique. Dans le chapitre suivant, seront détaillés les dispositifs expérimentaux qui nous ont permis d'étudier la décohérence des boîtes quantiques à basse température.

Chapitre 2

Dispositifs expérimentaux

Dans ce chapitre nous allons détailler les dispositifs et les techniques expérimentales développés ou utilisés au cours de cette thèse. Dans un premier temps nous rappellerons la technique de microphotoluminescence sur boîte unique. Ensuite nous expliquerons comment nous contrôlons l'état de charge de la boîte à l'aide d'échantillons insérés dans des structures Schottky. Enfin, dans une dernière partie nous détaillerons la méthode de spectroscopie par transformée de Fourier dont la haute résolution spectrale ($0.5\mu eV$) permet d'analyser les profils de raie.

2.1 Expérience de microphotoluminescence sur boîte unique

2.1.1 Principe de la photoluminescence

Dans un semiconducteur, le terme de photoluminescence décrit le processus d'émission de photons à partir de porteurs photocréés. Dans un premier temps le système absorbe un photon, un électron est alors excité de la bande de valence vers la bande de conduction en laissant un trou dans la bande de valence.

Ces paires peuvent être créées soit dans le GaAsv (le gap dans le matériaux non contraint à 4 K vaut $1.51 eV$) en utilisant un laser He-Ne, soit dans la couche de mouillage d'InAs (le gap dans le matériaux non contraint à 4 K vaut $0.418 eV$) avec une diode laser ou un laser Titane-Saphir accordable soit directement dans la boîte (environ $1.35 eV$) avec ce même laser. Après quelques dizaines de picosecondes, les porteurs (électrons et trous) relaxent vers les niveaux les plus bas du système par émission de phonons ou par des processus plus complexes de type Auger [19]. Ces niveaux peuvent être les niveaux de la boîte ou des niveaux liés à des défauts où les porteurs sont piégés. Quand une paire électron-trou se trouve piégée dans la boîte, il peut y avoir recombinaison de l'électron et du trou au bout d'un temps typique de l'ordre d'une ns (voir Fig. 2.1). Ce sont les photons émis lors de cette recombinaison que nous étudions. En dispersant le

spectre d'émission, nous pouvons obtenir des informations sur ces niveaux. C'est la spectroscopie de photoluminescence (PL) [18].

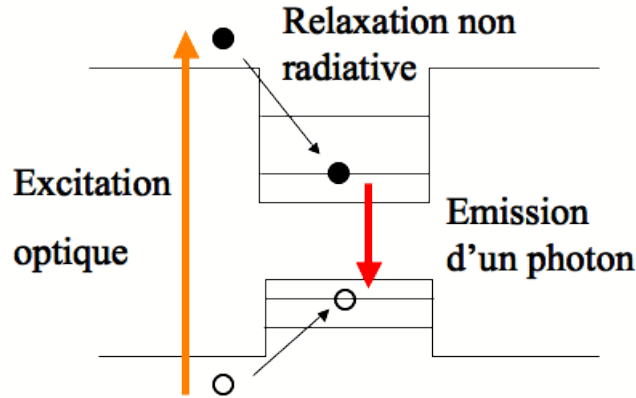


FIG. 2.1 – Principe de la photoluminescence de boîte quantique.

L'absorption du système dépend de la longueur d'onde de l'excitation. En pompant dans la barrière de GaAs, l'excitation lumineuse est plus efficace, ainsi plus de porteurs sont créés. Créées à haute énergie, ces charges libres peuvent peupler aussi les niveaux des pièges. Le niveau du signal de boîte est important, mais nous peuplons également les pièges, source de fluctuations électrostatiques. Une excitation quasi résonante sera bien moins efficace, mais seules les boîtes seront excitées.

Photoluminescence à basse température

Nous étudions les photons issus de la recombinaison radiative d'un électron et d'un trou d'une boîte quantique unique. Le niveau de signal détecté est faible, typiquement 5000 coups par seconde. Limiter les processus concurrents est nécessaire, notamment les recombinaisons non radiatives, il faut donc travailler à basse température. Dans ce but, on place l'échantillon sur un doigt froid contenu dans un cryostat de marque Oxford de type "Low Movement". Le doigt froid est refroidi par une circulation d'hélium. La température est contrôlée à l'aide d'une résistance chauffante placée sur le doigt froid. Nous pouvons ainsi travailler à des températures comprises entre 7 K et 100 K. Au delà de 100 K, le signal de PL des boîtes est trop faible pour pouvoir être enregistré.

Dispositif optique

Microscopie en géométrie confocale

L'ensemble du montage de photoluminescence est décrit sur la figure 2.2. Le faisceau lumineux issu de la source laser (He-Ne ou Ti-Saphir) est dirigé par un système de miroirs vers l'échantillon. Nous focalisons le laser à l'aide d'un

objectif de microscope de type Cassegrain de marque Ealing (X36), possédant une ouverture numérique de 0.5 et une focale de 5.4 *mm*. La taille de la zone excitée sur l'échantillon est de l'ordre d'un micron. La détection se fait par la même voie : on place une lame semiréfléchissante en sortie du microscope qui, tout en transmettant l'excitation laser, renvoie la photoluminescence vers la zone d'analyse spectrale.

Comme les signaux de photoluminescence des boîtes sont très faibles, il faut absolument limiter le signal de diffusion en provenance des optiques ou de l'échantillon. Pour cela nous utilisons un dispositif de microscopie confocale. Lorsqu'un

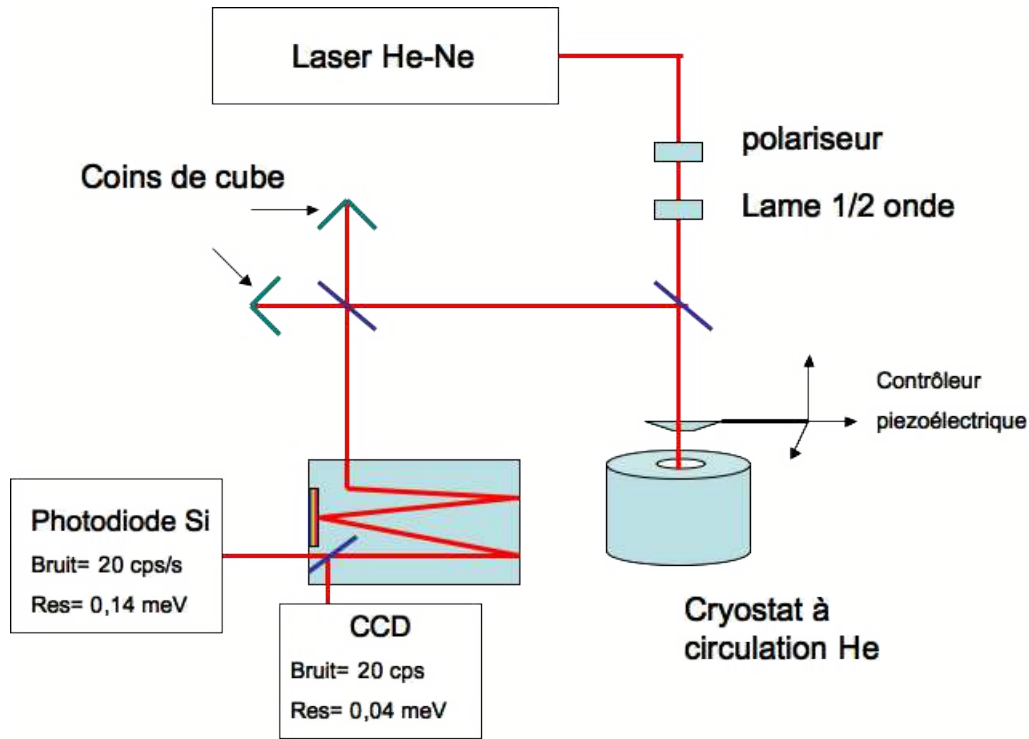


FIG. 2.2 – Schéma de montage de microphotoluminescence de boîte quantique unique.

faisceau laser est focalisé sur le plan de boîte, tous les plans intermédiaires (au dessus ou en dessous des boîtes) vont diffuser le laser et donc introduire du bruit par rapport au signal des boîtes. La géométrie confocale consiste à faire l'image de ce plan de boîtes en sortie du microscope et de sélectionner la luminescence issue de cette zone avec un "pin-hole". On limite alors la diffusion du laser. Ainsi, en adaptant la taille du pinhole à l'image de la zone excitée par le laser, nous pouvons augmenter le rapport signal/bruit.

Nous pouvons encore réduire la diffusion du laser : si nous utilisons une source excitatrice à haute énergie (He-Ne), nous coupons la diffusion laser avec des filtres optiques passe-haut en longueur d'onde (RG). Par contre, si nous utilisons le Ti-Saphir pour avoir une excitation plus résonante, un système (lame

quart d'onde+polariseur) nous permet de travailler en polarisation croisée. Nous détectons la polarisation orthogonale à celle du laser.

Analyse de la photoluminescence

La photoluminescence est analysée à l'aide d'un spectromètre de marque Jobin-Yvon (HR 320) de 32 *cm* de focale avec un réseau de 1200 traits/*mm* blazé à 750 *nm*. Les deux sorties du spectromètre sont utilisées pour deux types de détection. La première voie est une détection monocanale avec un détecteur silicium à avalanche (APD) à très bas bruit (20 coups par seconde). La seconde voie est une détection multicanale avec une barrette CCD. Nous les décrivons dans la section suivante.

Détection monocanale

Dans cette voie de détection, nous plaçons une fente à la sortie de la détection limitant la plage spectrale des photons étudiées. La photodiode utilisée est à très bas bruit électronique et permet donc de détecter un signal de photoluminescence de boîte unique. La surface active de la photodiode (APD) placée sur cette voie est très petite (150 μm) et si la fente de sortie du spectromètre est complètement fermée la résolution est d'environ 150 μeV . Pour une fente complètement ouverte, la résolution est alors fixée par le diamètre de la photodiode et vaut 450 μeV . Un dispositif de comptage de photons est placé en aval. Un programme informatique permet de commander la position du réseau et ainsi d'enregistrer des spectres de photoluminescence.

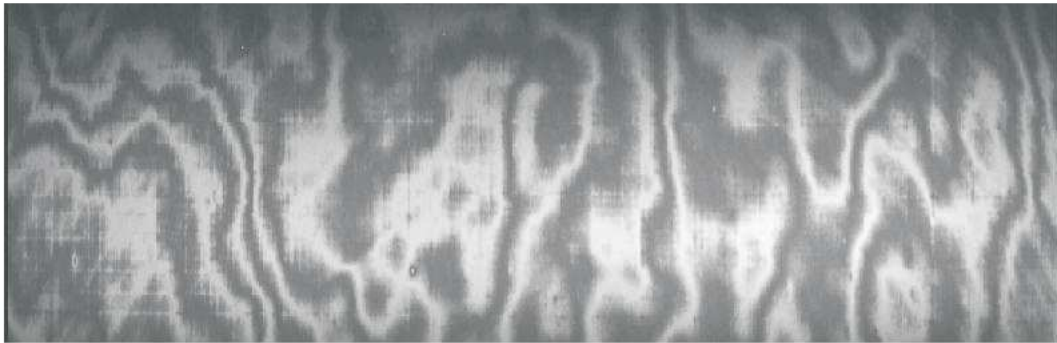


FIG. 2.3 – Figure d'interférences dues aux inhomogénéités d'épaisseur de la barrette CCD .

Détection multicanale

Sur l'autre voie du spectromètre qui n'a pas de fente, une barrette CCD en Silicium (1024x525 pixels) permet de faire l'image du spectre obtenu. Ce dispositif a été développé par David Darson du service Electronique du Laboratoire

Pierre Aigrain. La barette est refroidie dans un cryostat à l'azote liquide, ce qui limite le bruit thermique de la barette CCD à 10^{-6} coups par seconde pour une température de 175 K . Le bruit de lecture d'un tel système est de 10 coups. Ainsi avec une pose de 10 minutes, le bruit thermique reste inférieure à 10^{-3} coups par seconde. C'est donc le bruit de lecture qui est prépondérant. Pour amplifier le rapport signal sur bruit, nous pouvons augmenter le temps de pose en gardant un bruit constant. La sensibilité de ce dispositif est telle que nous sommes gênés par l'inhomogénéité de la surface du détecteur. Si on éclaire de façon uniforme la barette CCD, nous observons une structure de franges d'interférences reflétant les inhomogénéités d'épaisseur (voir fig. 2.3). Si on réalise un spectre à l'aide de la barette CCD, il faut donc corriger les images enregistrées pour supprimer la structuration due aux défauts de la barette.

Sur la figure 2.4, nous pouvons observer un spectre de microphotoluminescence de quelques boîtes. Sur cette image, l'axe X représente la position spectrale, car les traits du réseau sont verticaux. La position en ordonnées du spectre enregistré change avec la position du pinhole.

Nous pouvons voir sur cette figure que le spectre est très structuré. Le point blanc situé entre les pixels 300 et 400 correspond à un signal de boîte quantique unique. La longueur d'onde correspondant au centre de l'image CCD est déterminée par l'angle α du réseau. Une fois α fixé, la largeur de la CCD nous permet d'étudier le spectre sur une fenêtre spectrale de 40 meV . La barette CCD étant constituée de 1024 pixels, la résolution maximale de ce dispositif sera donc donnée par la plage spectrale de lecture d'un seul pixel : $45\text{ }\mu\text{eV}$.

2.1.2 Microphotoluminescence de boîte quantique unique

Sélection spectrale et spatiale

Il a été montré que la densité de boîtes quantiques est d'autant plus élevée que l'épaisseur de la couche de mouillage est grande. Cette densité peut varier entre 10^8 et 10^{11} boîtes par cm^2 . Si nous réalisons une expérience de photoluminescence sur un ensemble de boîtes, en considérant une densité de 10^{11} boîtes par cm^2 pour un spot laser d' $1\text{ }\mu\text{m}^2$, le nombre de boîtes excitées s'élève à 10^3 . Nous observons un élargissement inhomogène du spectre correspondant à la dispersion en taille des boîtes quantiques. Typiquement la largeur inhomogène est de 50 meV . Une sélection spectrale ne peut donc suffire à réduire le nombre de boîtes étudiées à une seule boîte et il faut également sélectionner spatialement les boîtes. Il est nécessaire de créer des structures (mésa ou trous) qui réduisent localement la densité surfacique des boîtes.

Structuration des échantillons

Sur la surface de l'échantillon sont créés par gravure chimique des plots carrés de côté variable ($0,2$ à $10\text{ }\mu\text{m}$) en dehors desquels il n'y a pas de boîte quantique,

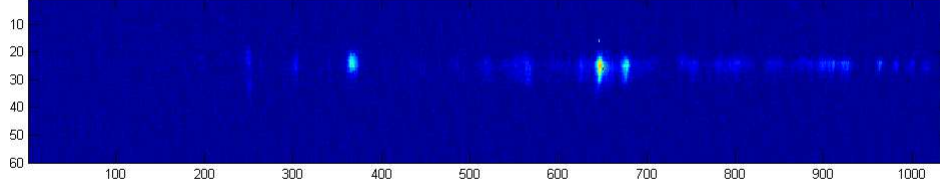


FIG. 2.4 – Spectre de microphotoluminescence obtenu avec la barette CCD. On peut distinguer trois raies correspondant à trois boîtes quantiques.

ces structures sont appelées mésas. Si nous travaillons sur des échantillons de densité 10^{11} boîtes par cm^2 , une méssa de $1\ \mu m$ de côté contient 1000 boîtes ; une méssa de $0,1\ \mu m$ de côté, seulement une boîte en moyenne. Cette technique a été pour la première fois développée et utilisée par Marzin *et al* au CNET en 1994 [55].

Une autre méthode permet de réduire le nombre de boîtes excitées. Elle consiste à déposer une couche d'or sur l'échantillon et à la graver selon un motif périodique de taille variable ($0,1$ à $1\ \mu m$ de diamètre). La couche d'or joue le rôle d'un masque et permet de limiter spatialement l'excitation et la détection. C'est cette méthode qui a été utilisée au cours de la fabrication de notre second échantillon. Nous détaillerons sa structure dans la suite de ce chapitre.

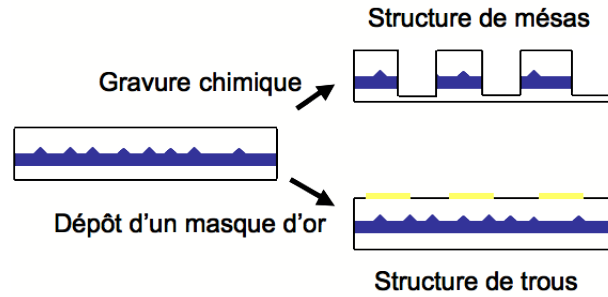


FIG. 2.5 – structuration des échantillons

Pour étudier une boîte quantique unique, il faut travailler sur des mésas suffisamment petites pour ne contenir que quelques boîtes (une dizaine). Une fois l'excitation et la détection optimisées sur un signal d'ensemble, l'utilisation de la CCD permet d'obtenir une cartographie spectrale des boîtes présentes dans la méssa. L'imagerie CCD permet donc de caractériser les mésas et de choisir les boîtes dont nous allons étudier le profil. L'étude d'une raie se fait par spectrométrie par transformée de Fourier. Pour cette étude nous utilisons la détection monocanale (de fenêtre spectrale 150 ou $450\ \mu eV$). Il est donc indispensable que seule la photoluminescence de la boîte étudiée soit analysée. Ainsi nous devons choisir une boîte quantique dont la raie apparaisse isolée dans le spectre CCD .

Une fois la boîte déterminée nous enregistrons la figure d'interférence de sa photoluminescence, obtenue à l'aide de l'interféromètre de Michelson (voir Fig. 2.2). Nous pouvons alors étudier le spectre de cette raie et sa dépendance en température et en puissance. Nous détaillerons dans une section ultérieure cette méthode. Dans la partie suivante nous présentons les deux échantillons utilisés au cours de nos travaux.

2.1.3 Présentation des échantillons utilisés

Echantillon mésa sur or

Le premier échantillon, nommé "échantillon mésa sur or", qui a été utilisé au cours de cette thèse a été fabriqué au CNET à Bagneux par Jean-Michel Gérard par épitaxie par jets moléculaires. Sa structure est décrite dans le tableau 2.1.

- Le plan d'InAs contenant les boîtes quantiques est placé entre deux couches de GaAs qui assurent le confinement vertical des charges dans les boîtes quantiques.
- Autour des plans de GaAs, deux plans de GaAlAs sont ajoutés. Composant à grand gap, GaAlAs est utilisé comme une barrière de potentiel qui limite la diffusion des porteurs loin du plan de boîte.
- La couche d'Au est placée sous le plan de boîte, ce miroir d'or permet de réfléchir la luminescence perdue vers le bas et la géométrie de mésas permet une extraction latérale de la photoluminescence.
- La couche de Si est un substrat de transfert qui sert à retourner l'échantillon. En effet après sa croissance, l'échantillon est retourné et collé sur le Si pour pouvoir graver le substrat de GaAs. A ce stade, le plan de boîtes est très proche de la surface. Il est alors possible de graver la surface de l'échantillon, et ainsi de structurer la surface en mésas de tailles variables.

Matériaux	Epaisseur (nm)	Utilisation
GaAlAs	14	Barrière de potentiel
GaAs	50	Confinement vertical
InAs	1.6	Plan de boîtes
GaAs	50	Confinement vertical
GaAlAs	14	Barrière de potentiel
Au	200	Miroir
Si		Substrat de transfert

TAB. 2.1 – Description de l'échantillon Mésa sur Or.

Matériaux	Épaisseur (nm)	Utilisation
Au	200	Masque de structuration
Ti	10	Contact électrique supérieur
GaAs	60	Contact Schottky
AlGaAs	75	Barrière de potentiel
GaAs	15	Confinement vertical
InAs	1.6	Plan de boîte
GaAs	25	Confinement vertical
GaAs dopé n+	50	Contact électrique inférieur

TAB. 2.2 – Description de l'échantillon de boîte avec champ électrique

Echantillon "boîtes quantiques sous champ électrique"

Au cours de cette thèse nous avons analysé l'effet d'un champ électrique transverse sur le couplage de la boîte avec son environnement. Dans ce but nous utilisons des échantillons possédant une structure Schottky contenant un plan de boîtes quantiques. Ils ont été fabriqués à Sheffield par le LDS, groupe de recherche sur les structures à basse dimensionnalité dirigé par Maurice Skolnick. Nous détaillons à présent la structure de ces échantillons avec masques submicro-

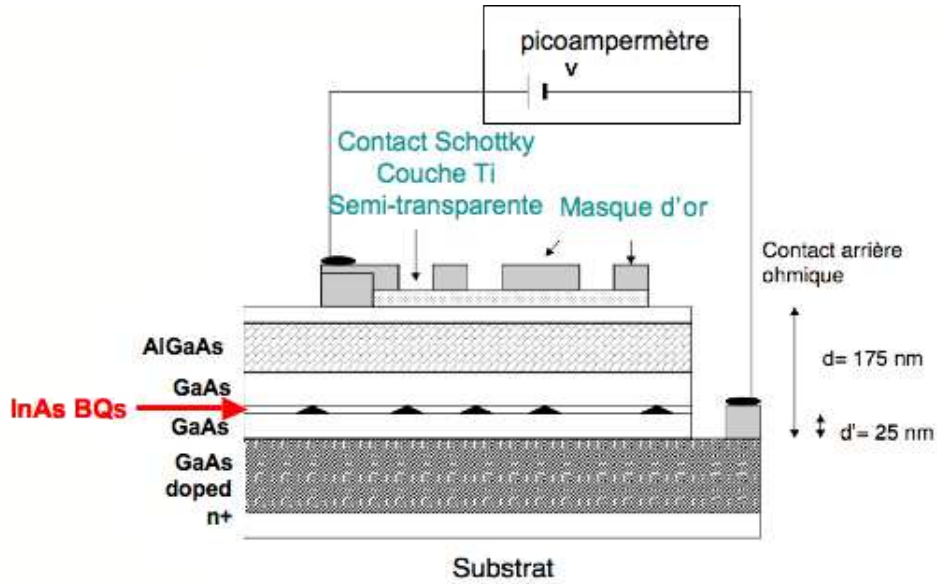


FIG. 2.6 – Echantillon utilisé pour l'étude optique d'une boîte quantique sous champ électrique.

niques (résumée dans le tableau 2.2). Un schéma de l'échantillon est représenté sur la figure 2.6.

- La couche de GaAs, déposée au dessus d'un substrat de GaAs, est fortement dopée n^+ ($4.10^{14}.cm^{-3}$) par l'introduction d'atomes de Silicium. Cette

couche va servir de réservoir d'électrons et d'électrode arrière.

- Le plan d'InAs contenant les boîtes quantiques (densité 5.10^{10} boîtes par cm^2) est entre deux plans de GaAs pour assurer le confinement vertical dans les boîtes quantiques.
- La couche d'AlGaAs est une barrière de potentiel et permet d'empêcher la circulation d'un courant d'électrons.
- La couche de Titane constitue le contact avant. Puisque le titane est en contact avec le GaAs, c'est un contact Schottky [80]. La couche de titane étant semitransparente, elle permet d'uniformiser le champ électrique au sein de l'échantillon tout en laissant passer partiellement la luminescence des boîtes.
- Un masque d'Au (200 nm) est déposé à la surface de l'échantillon. Sa nanostructuration est réalisée en utilisant les techniques de lithographie par jet moléculaire (Electron Beam Lithography) et de gravure sèche (Dry Etching).

Deux reprises de contact en Au permettent de mettre l'échantillon sous tension : une pour le contact arrière qui est un contact ohmique et une pour le contact avant qui est un contact Schottky (voir Fig. 2.6). Cet échantillon permet d'étudier l'effet d'un champ électrique sur la photoluminescence d'une boîte quantique unique.

2.2 Etude optique d'une boîte quantique sous champ électrique

Nous déterminons d'abord le champ électrique que subit la boîte quantique et ensuite la structure de bande de cet échantillon.

2.2.1 Evaluation du champ électrique régnant au sein de l'échantillon

Dans un premier temps, nous nous intéressons à la structure de bande de la diode non polarisée. Nous devons détailler la structure de bande au voisinage des contacts avant et arrière.

- Le contact arrière est un contact ohmique Au-GaAs dopé n+, il laisse passer le courant de manière quasi parfaite. Nous considérons une épaisseur nulle pour la zone de déplétion du côté du contact ohmique (dopage important du GaAs : n^+).
- Le second contact est un contact Schottky. Dans cette configuration, il y a un transfert d'électrons du métal vers le semiconducteur. Cette charge à l'interface provoque l'apparition d'une barrière de potentiel pour les électrons, c'est la barrière Schottky. Elle est représentée sur la figure 2.7. Sans polarisation de la diode, la structure de bande est incurvée du fait de cette

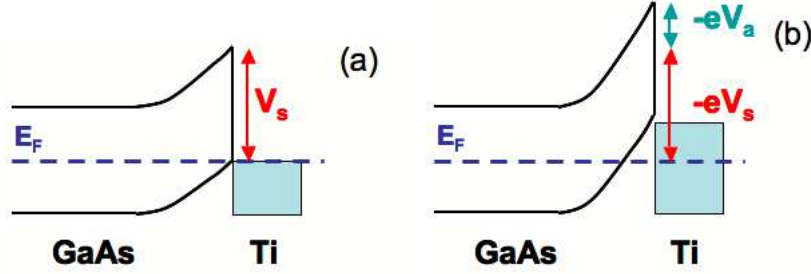


FIG. 2.7 – Structure de bande pour un contact schottky non polarisé (fig (a)) ou polarisé en inverse (fig(b)).

barrière Schottky. La barrière Schottky dépend du métal et du semiconducteur employés. Le contact Schottky de l'échantillon utilisé pour notre étude est constitué d'une couche de GaAs et d'une couche de titane, la tension Schottky V_s mesurée vaut -1.4 V . Nous reviendrons sur la mesure de cette tension ultérieurement (voir fig. 2.9).

En supposant que la zone de déplétion du contact Schottky s'étend jusqu'à la boîte [19], la structure de bande obtenue est décrite dans la figure 2.8. Nous considérons donc que le champ électrique est uniforme au sein de l'échantillon. Nous allons déterminer sa valeur.

Si la diode est non polarisée, le champ électrique est directement proportionnel à la tension Schottky. Ce champ vaut alors :

$$E = -\frac{V_s}{L_B} \quad (2.1)$$

où L_B est la distance entre le contact ohmique et le contact Schottky. D'après le tableau 2.2 cette longueur vaut $L_B = 175\text{ nm}$.

En polarisant la diode, nous introduisons une différence de potentiel V_a entre les deux contacts de la diode [80]. Cette source de tension permet de contrôler le champ électrique régnant au sein de la diode (Fig. 2.7). Ce champ électrique total vaut :

$$E = -\frac{V_s + V_a}{L_B} \quad (2.2)$$

Par convention, une différence de tension V_a positive abaisse le niveau de Fermi du métal par rapport à celui du contact ohmique, le champ électrique est alors réduit. D'après l'équation 2.2, on déduit qu'il existe une tension appliquée ($V_a = -V_s$) pour laquelle le champ électrique est nul. C'est la tension de redressement de bande de la diode Schottky. C'est dans ce régime que nous pouvons mesurer la tension Schottky.

Expérimentalement, la tension appliquée est produite par un picoampèremètre Keithley utilisé comme source de tension. Cet appareil permet de mesurer simultanément le courant traversant la diode. Sur la figure 2.9 on peut voir l'évolution

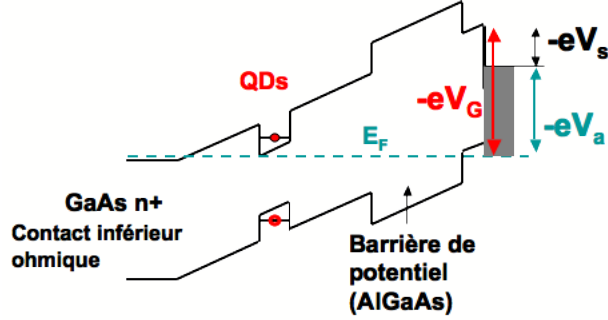


FIG. 2.8 – Structure de bande de la diode contenant des boîtes quantiques. La position des états discrets de la boîte par rapport au niveau de Fermi est contrôlée à l'aide de la tension appliquée V_a

du courant de diode en fonction de la tension appliquée. Tant que $V_a < -V_s$, le courant circulant dans la diode est très faible, c'est un courant de fuite qui vaut environ 70 pA . On voit que pour $V_a = -V_s$, l'intensité du courant augmente considérablement, la diode devient passante. En mesurant la caractéristique $I(V)$ nous pouvons ainsi mesurer la tension Schottky. Quand la diode est passante, l'évolution du courant est décrit par l'expression [17] :

$$I(V_a) = I_{fuite}(\exp((V_a - V_s)/V_d) - 1) \quad (2.3)$$

Les paramètres d'ajustements sont $I_{fuite} = 75 \text{ pA}$, $V_s = 1.4 \text{ V}$ et une tension $V_d = 0.75 \text{ V}$. La mesure de la caractéristique $I(V_a)$ permet donc d'obtenir la

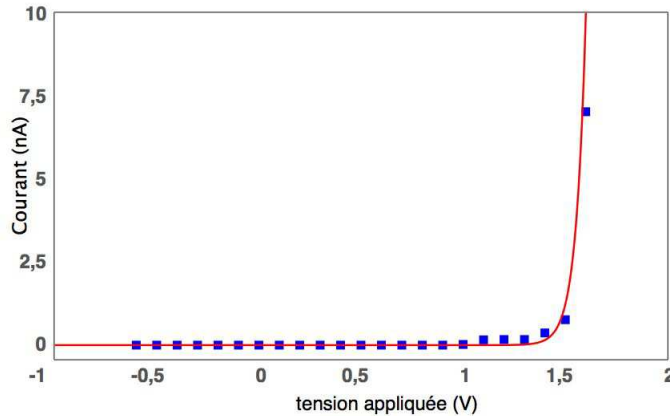


FIG. 2.9 – Evolution du courant de diode en fonction de la tension appliquée. La diode est polarisée en inverse tant que $V_a < -V_s$.

tension Schottky V_s et donc de connaître le champ électrique d'après l'équation 2.2. Nous allons à présent détailler l'influence du champ électrique sur l'état de charge de la boîte qui est en régime de blocage de Coulomb.

2.2.2 Photoluminescence d'une boîte quantique sous champ électrique

Optimisation du signal de photoluminescence

Lorsque nous excitons cet échantillon avec le laser He-Ne (1.95 eV), les charges photocréées relaxent vers les états de plus basse énergie de la boîte tant que le champ électrique n'est pas trop important. Nous pouvons alors peupler les boîtes quantiques et analyser leur luminescence comme il a été décrit dans la section 2.1. Le pico-ampèremètre utilisé permet de mesurer le courant engendré par l'excitation optique. Avec ce photocourant, nous optimisons l'excitation de l'échantillon avec le contrôleur piezo-électrique de l'objectif de microscope.

Contrôle de la charge de la boîte

La structure de bande de l'échantillon est représentée sur la fig 2.8. Avec un tel échantillon, nous pouvons contrôler, par le biais de la polarisation de la diode, la position des niveaux électroniques de la boîte quantique par rapport au niveau de Fermi du réservoir d'électrons du contact ohmique. Ainsi nous pouvons contrôler l'état de charge de la boîte quantique. Sans excitation optique, l'état de la boîte peut être le vide d'excitation \emptyset , un électron simple e , un trou h . Toute excitation optique crée des paires électron-trou, les états de la boîtes sont alors par exemple un trou h , un état de paire électron-trou X ou un trion X^- , constituée de deux électrons et d'un trou. Différents états peuvent exister dans la boîte quantique : un électron simple e , un trou h , une paire électron-trou dans l'état fondamental noté X (par analogie avec l'exciton) ou bien encore un trion noté X^- constitué d'un trou et de deux électrons. Nous allons étudier l'évolution de l'énergie de ces différents états en fonction de la tension appliquée V_a . L'évolution de l'énergie d'un état β de boîte de charge q avec la tension appliquée V_a est donnée par l'expression [6] :

$$E_\beta(V_a) = E_\beta^0 - q(V_a + V_s) \frac{L_a}{L_b} \quad (2.4)$$

où E_β^0 est l'énergie de l'état de charge β sans champ électrique nul, V_s est la tension Schottky, L_b la distance entre le contact arrière et le contact avant, et L_a la distance séparant les boîtes quantiques du contact arrière. Ainsi le potentiel électrostatique est proportionnel au bras de levier $\lambda = L_b/L_a$ qui est caractéristique de la diode et vaut 7 dans notre cas. Pour simplifier l'expression 2.4 nous notons $E_{el}(V_a)$ le potentiel $(V_a + V_s)/\lambda$. L'égalité 2.4 devient alors :

$$E_\beta(V_a) = E_\beta^0 - qE_{el}(V_a) \quad (2.5)$$

Nous pouvons donc remarquer que l'énergie d'un état de charge β sera d'autant plus sensible aux variations du champ électrique que la charge de cet état est élevée. L'énergie E_β^0 dépend de chaque état de charge. Le tableau 2.3 contient

l'expression théorique de cette énergie en fonction de l'état de charge [6]. Les énergies apparaissant dans ce tableau sont décrites dans la figure 2.10. Nous allons les décrire brièvement en donnant les valeurs qu'utilise Seidl.

Nous ne tenons pas compte de l'énergie électrostatique d'interaction de la charge e avec sa charge image $-e$ située dans le contact arrière qui est très faible (typiquement 1 meV) [6]. E_i (134 meV) est l'énergie d'ionisation de l'électron piégé dans la boîte. E_g (1306 meV) est l'énergie séparant le premier état de valence et le premier état de conduction de la boîte quantique. E^{ee} (23 meV) est l'énergie d'interaction entre deux électrons situés dans la boîte. E^{eh} (29 meV) est l'énergie d'interaction d'un trou et d'un électron de la boîte. Toutes ces énergies sont des valeurs positives. Nous allons décrire les énergies E_β^0 des différents états

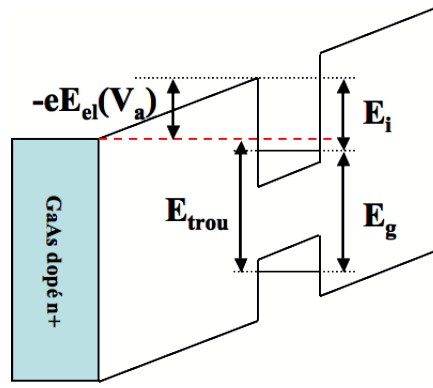


FIG. 2.10 – Représentation schématique des énergies caractéristiques de la boîte quantique sous champ électrique [6].

possibles de la boîte quantique (voir Tab.2.3)

- L'énergie du vide d'excitation \emptyset est nulle par définition.
- Pour passer de l'état à un électron e à l'état \emptyset il faut ioniser l'électron de la boîte. Sans champ électrique, l'énergie à fournir est E_i . Ainsi l'énergie de l'état e vaut $-E_i$.
- L'énergie de l'état à deux électrons $2e$ est l'énergie de 2 état à un électron laquelle nous ajoutons l'énergie d'interaction électron-électron.
- Comme l'énergie nulle est fixé au niveau de la mer de Fermi et que l'énergie du trou est l'inverse de l'énergie du niveau électronique associé, nous pouvons calculer l'énergie du trou de plus basse énergie dans la boîte quantique. D'après la figure 2.10 cette énergie vaut $E_g + E_i$.
- L'état X contient un électron et un trou, son énergie sera la somme des énergies du trou et de l'électron et d'un terme d'interaction électron-trou E^{eh} qui est négatif puisqu'il stabilise la paire.
- L'énergie du trion X^- se déduit en sommant l'énergie de l'état X et de l'état e , en faisant attention que l'électron supplémentaire interagit avec un trou et un électron. Il faudra donc ajouter cette énergie d'interaction $E^{ee} - E^{eh}$.

Etat de charge de la boîte	E_β^0	décalage Stark
\emptyset	0	0
e	$-E_i$	$-eE_{el}(V_a)$
2e	$-2E_i + E^{ee}$	$-2eE_{el}(V_a)$
h	$E_g + E_i$	$eE_{el}(V_a)$
X	$E_g - E^{eh}$	0
X^-	$E_g - E_i + E^{ee} - 2E^{eh}$	$-eE_{el}(V_a)$

TAB. 2.3 – 2ème col : Energie pour chaque état de charge de la boîte quantique. 3ème col : Evolution de l'énergie d'interaction électrostatique de la charge de la boîte avec le champ électrostatique engendré par V_s et V_a . [6].

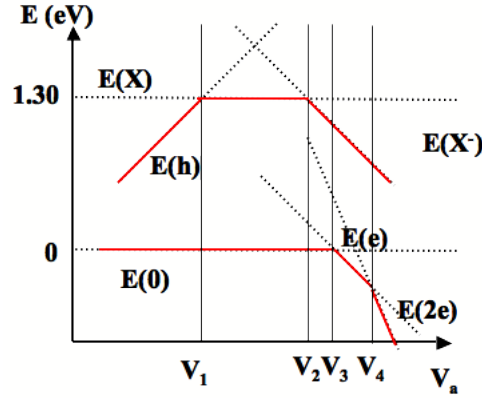


FIG. 2.11 – Evolution des énergies des états de la boîte en fonction de la tension appliquée V_a . Les traits pleins correspondent aux états stables, les traits pointillés aux états instables. [6]

A partir du tableau 2.3, nous représentons sur la figure 2.11 l'évolution en énergie des états e , $2e$, h , X , X^- et du vide en fonction de la tension appliquée. Nous voyons que pour une même tension appliquée, plusieurs états de charge coexistent. Or, en étudiant la photoluminescence de boîte quantique unique, nous considérons la transition entre états initiaux, qui sont ici un trou, l'état X ou bien l'état X^- , et des états finaux qui sont le vide ou un électron dans la boîte. Il faut donc déterminer l'évolution de la nature de ces états en fonction de V_a . Nous allons décrire l'évolution de l'état final avec V_a .

- Pour $V_a < V_3$, l'état fondamental est le vide d'excitation, la structure de bande correspondante est représentée sur la figure. L'état S_e est plus haut en énergie que le niveau de Fermi E_F , les électrons ne peuvent rester dans cette état. 2.12(a),
- Pour $V_a = V_3$, le premier niveau électronique de la boîte est résonant avec le niveau de Fermi, cas (b) de la figure 2.12, l'état à un électron devient donc stable,

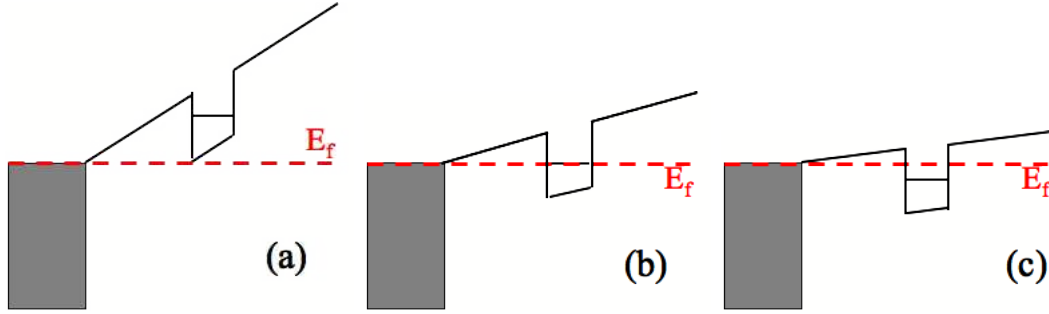


FIG. 2.12 – Evolution du premier état de conduction de la boîte quantique en fonction de la tension V_a appliquée. Fig (a) $V_a < V_3$, Fig (b) $V_a = V_3$ et Fig(c) $V_3 < V_a$.

- Pour $V_3 < V_a < V_4$, cas (c) de la figure 2.12, seul l'état à un électron est stable. La boîte quantique peut contenir deux électrons mais du fait de l'interaction coulombienne entre les deux électrons, la résonance entre le niveau de Fermi et le premier niveau électronique de la boîte ne permet pas d'avoir deux électrons dans la boîte. C'est le blocage de Coulomb. Il faut encore diminuer le champ électrique de telle sorte que l'énergie de l'état à 2 électrons passe en dessous de l'énergie de l'état à un électron. La différence $V_4 - V_3$ est alors proportionnelle à l'énergie d'interaction électron-électron E^{ee} . Plus précisément on a $e(V_4 - V_3) = E^{ee}$.
- Pour $V_a > V_4$, l'état à deux électrons est l'état stable.

Nous détaillons à présent les états initiaux.

- Pour $V_a < V_1$, les états peuplés par le pompage sont l'état de trou, h , et l'état X . L'énergie de h étant inférieure à celle de X , X n'est pas un état favorisé, h sera l'état initial. Car l'état S_e est plus haut en énergie que le niveau de Fermi E_F , l'électron sort de la boîte par effet tunnel (cas (a) de la figure 2.12).
- Pour $V_a = V_1$, les deux états (h et X) ont la même énergie. Il y a donc deux états initiaux possibles (cas (b) de la figure 2.12).
- Pour $V_1 < V_a < V_2$, l'état X devient l'état stable, car le niveau électronique passe sous le niveau de Fermi (cas (c) de la figure 2.12).
- Pour $V_a = V_2$, les états excitonique X et exciton chargé X^{-1} ont la même énergie.
- Pour $V_a > V_2$, l'état excité stable devient l'exciton chargé X^{-1} . L'état trion X^- ne peut accepter encore un électron car il ferait intervenir un niveau électronique d'énergie beaucoup plus élevée. C'est le blocage de Coulomb excitonique.

Il est important de noter que la transition $[0 - e]$ ($V_a = V_3$) et la transition $[X - X^-]$ ($V_a = V_2$) n'ont pas lieu à la même tension. Cette différence provient du fait que dans l'état X^- il y a trois charges interagissant. D'après le tableau 2.3, la différence d'énergie $E(X^-) - E(X)$ diffère de $E(e) - E(0)$ par le terme

$E^{ee} - E^{eh}$. Ce terme est négatif : ceci provient du fait que dans l'exciton la présence du trou stabilise l'électron supplémentaire plus que l'électron ne le déstabilise. Le blocage de Coulomb est donc réduit. La mesure de la différence de tension $V_3 - V_2$ nous donne donc accès à la valeur de $E^{ee} - E^{eh}$. Typiquement cette énergie vaut 6 meV [16, 81, 82, 83]. Si le bras de levier de notre structure vaut 7, nous trouvons que la différence de tension $V_3 - V_2$ vaut environ 40 mV .

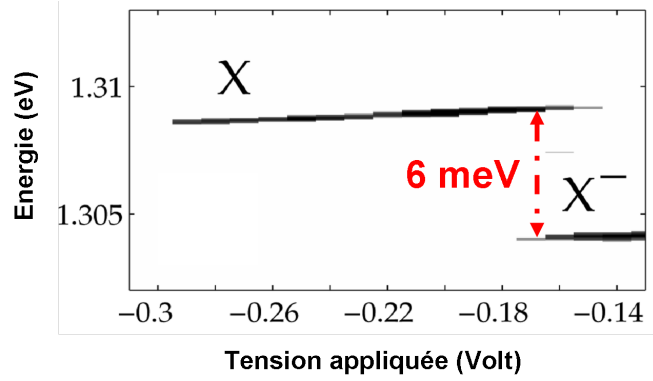


FIG. 2.13 – Evolution du spectre de photoluminescence d'une boîte quantique unique en fonction de la tension appliquée pour une température de $T=10\text{K}$, sous excitation He-Ne.

Evolution de la photoluminescence avec la tension applique

Nous venons de déterminer les domaines d'existence des différents états de charge en fonction de la polarisation de la diode. Cette analyse nous permet de comprendre l'évolution du spectre de PL d'une boîte unique.

- Pour $V_a < V_1$, l'état excité stable (h) ne contient pas de paire électron-trou, il ne peut y avoir de recombinaison. Nous ne voyons pas de signal de photoluminescence.
- Pour $V_1 < V_a < V_2$, l'état excité stable (X) est un état de paire. Après recombinaison de cette paire, l'état final est le vide d'excitation. Le photon émis a l'énergie de l'état (X).
- Pour $V_2 < V_a$, l'état excité stable (X^-), contenant 2 électrons et 1 trou est uniquement couplé à l'état (e) par recombinaison de sa paire électron-trou. Le photon émis possède l'énergie $E(X^-) - E(e)$. D'après le tableau 2.3, cette énergie vaut aussi $E(X) + E^{ee} - E^{eh}$. On retrouve la quantité $E^{ee} - E^{eh}$ pour le décalage des raies X et X^- . Les deux mesures de cette valeur sont indépendantes.

Nous avons étudié l'évolution du spectre de photoluminescence avec la tension appliquée. Ce spectre est tracé sur la figure 2.13. Nous distinguons deux raies qui existent sur des domaines de tension différents, nous voyons la raie correspondant à la recombinaison de X présente pour des tensions comprises entre -0.3 V

et -0.15 V. Sur cette même figure, nous voyons le début du plateau associé à la recombinaison d'une paire électron trou de X^- . Nous avons donc déterminé les valeurs de V_1 et V_2 : $V_1 = -0.29$ V et $V_2 = -0.16$ V. D'après le tableau 2.3, pour une tension V_a fixe, l'énergie séparant les deux raies vaut toujours $E^{eh} - E^{ee}$. Elle est caractéristique de la transition $X-X^-$. Sur cette figure nous mesurons une différence d'énergie égale de 6 meV.

Ainsi il est possible en appliquant une tension sur une diode Schottky contenant des boîtes quantiques de contrôler leur charge à l'électron près. Après avoir identifié chaque raie, nous pouvons étudier l'effet du champ électrique sur la largeur de raie pour un état de charge. La résolution spectrale de notre détection multicanale ne permet pas d'étudier l'évolution du profil, ni même de mesurer la largeur à mi-hauteur (typiquement une cinquantaine de μeV). Nous devons utiliser un interféromètre de Michelson pour résoudre spectralement les boîtes quantiques et nous détaillons le protocole expérimental qui permet d'étudier avec une grande précision les spectres de raie.

2.3 Spectroscopie par transformée de Fourier

La technique de spectroscopie par transformée de Fourier est exposée dans cette section. Elle permet d'atteindre des résolutions spectrales de l'ordre de 0.5 μeV et de déterminer la forme des raies car dans le cas des boîtes InAs/GaAs, les largeurs à mi-hauteur varient entre 5 et 100 μeV .

2.3.1 Principe

Le principe de la spectroscopie par transformée de Fourier est d'enregistrer la transformée de Fourier de $I(\omega)$, c'est à dire de détecter la figure d'autocorrélation du champ électrique émis par la boîte (voir figure 2.15). Pour cela, le signal passe dans un interféromètre de Michelson dont l'un des deux bras est de longueur variable et introduit un retard variable τ . La figure d'autocorrélation est produite quand on enregistre l'évolution de l'intensité de la figure d'interférence en fonction du retard entre les deux bras. A partir de la figure d'interférence, il est possible de calculer le spectre d'émission associé.

Soit $E(t)$ le champ électrique émis par la boîte. Nous ne nous occupons pas de l'aspect vectoriel du champ électrique car nous ne travaillons que selon une polarisation déterminée par le polariseur de détection placé en amont de l'interféromètre. En sortie de l'interféromètre, pour un retard τ , l'intensité détectée vaut :

$$I(\tau) = \int_{-T/2}^{T/2} |E(t) + E(t - \tau)|^2 dt \quad (2.6)$$

En effet si notre détecteur a un temps d'acquisition T , le signal est intégré sur

cette période. En développant l'intégrant de l'égalité 2.6, l'expression devient :

$$I(\tau) = 2 \int_{-T/2}^{T/2} E(t) E^*(t) dt + 2\Re \left(\int_{-T/2}^{T/2} E(t) E^*(t - \tau) dt \right) \quad (2.7)$$

Si nous introduisons l'intensité moyenne I_0 définie par :

$$I_0 = \int_{-T/2}^{T/2} E(t) E^*(t) dt \quad (2.8)$$

nous pouvons alors exprimer l'intensité en sortie de l'interféromètre sous la forme :

$$I(\tau) = 2I_0 [1 + \gamma(\tau)] \quad (2.9)$$

avec :

$$\gamma(\tau) = \frac{\Re \left[\int_{-T/2}^{T/2} E(t) E^*(t - \tau) dt \right]}{I_0} \quad (2.10)$$

Le temps d'intégration du détecteur est de 22 *ms*, les retards τ typiques sont eux de l'ordre de 200 *ps*. On peut assimiler le temps d'intégration à un temps infini. L'expression 2.10 devient alors :

$$\gamma(\tau) = \frac{\lim_{T \rightarrow \infty} \Re \left(\int_{-T/2}^{+T/2} E(t) E^*(t - \tau) dt \right)}{I_0} \quad (2.11)$$

On reconnaît alors au numérateur de cette expression la fonction d'autocorrélation du champ électrique. On peut alors utiliser le théorème de Wiener-Khintchine qui montre que la fonction d'autocorrélation de l'amplitude est la transformée de Fourier de la densité spectrale :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T/2}^{+T/2} E(t) E^*(t - \tau) dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} d\omega \quad (2.12)$$

L'intensité détectée s'écrit alors :

$$I(\tau) = 2I_0 \left[1 + \frac{1}{I_0} \Re (TF(|E(\omega)|^2)) \right] = 2I_0 \left(1 + \frac{1}{I_0} \Re \left(\int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega) e^{-i\omega\tau} d\omega \right) \right) \quad (2.13)$$

$|E(\omega)|^2 = I(\omega)$ est la densité spectrale de puissance du rayonnement. Nous mesurons expérimentalement la norme de la fonction $\gamma(\tau)$ qui est le contraste de la figure d'interférence. Si ω_0 est la fréquence centrale de la raie, on peut montrer que l'intensité détectée vaut [84] :

$$I(\tau) = 2I_0 [1 + C(\tau) \cos(\omega_0\tau + \phi(\tau))] \text{ avec } C(\tau) = \frac{|TF(I(\omega))|}{I_0} \quad (2.14)$$

Le calcul de la fonction $\phi(\tau)$ est détaillé dans [84] et $C(\tau)$ est la norme de la transformée de Fourier du spectre. C'est cette fonction que nous obtenons expérimentalement. Sa mesure donne accès, par transformée de Fourier, au spectre de la raie.

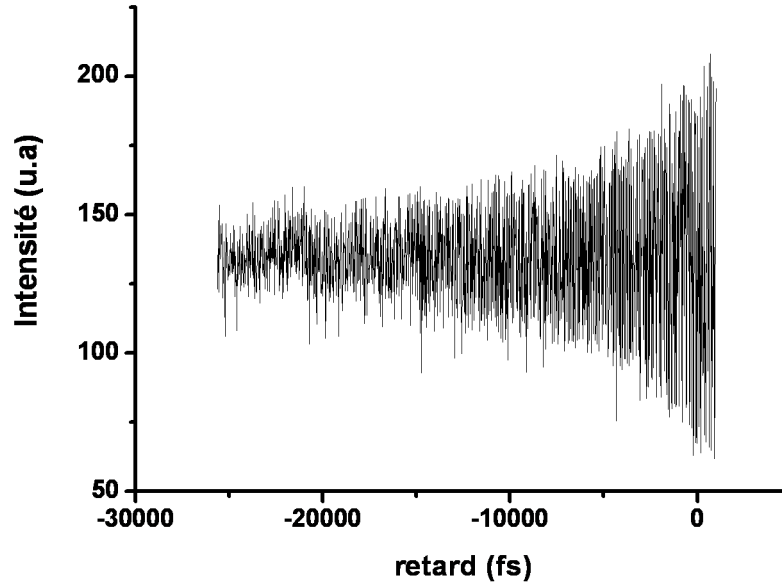


FIG. 2.14 – Enregistrement d'un interférogramme, pas = 10 fs, durée d'intégration = 0.5 s, temps total pour de la mesure : 41 min.

2.3.2 Interféromètre de Michelson

Description de l'interféromètre

L'interféromètre de Michelson utilisé a été monté par Cécile Kammerer, Guillaume Cassabois et Christophe Voisin. Dans cet interféromètre, la lame séparatrice semi-réfléchissante permet de séparer le signal issu de la boîte. Les deux faisceaux lumineux sortant de la lame, se propagent dans les deux bras du Michelson. Le miroir de chaque bras est un coin de cube rétro-rélecteur, ce qui facilite le réglage du Michelson. L'un des deux coins est monté sur une ligne à retard motorisée. Ces miroirs permettent de renvoyer les deux faisceaux sur la séparatrice qui les recombine. Nous contrôlons le retard d'un des bras par rapport à l'autre avec la ligne à retard, le pas minimum pour le retard est de 0.66 fs .

En sortie du Michelson, le spectromètre décrit plus haut permet de filtrer le signal analysé par transformée de Fourier et de ne détecter que le signal de la boîte. Cependant la fenêtre spectrale du spectromètre doit être suffisamment grande pour ne pas tronquer le spectre d'émission de la boîte. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

Stabilité mécanique

Le pas du déplacement de la ligne à retard du Michelson est fixé à 20 fs . Ce pas est plus grand que $\frac{2\pi}{\omega_0}$ et produit un échantillonnage aléatoire qui est suffisamment dense pour ne pas déformer la figure d'interférence tout en permettant d'effectuer des enregistrements sur des retards assez longs (200 ps). Toutefois ces enregistrements ont des durées de l'ordre de l'heure. De fait, il faut absolument contrôler la stabilité mécanique du système pour pouvoir réaliser des enregistrements sans avoir à retoucher l'optimisation.

La stabilité mécanique du dispositif expérimental est donc essentielle pour une étude par spectroscopie par transformée de Fourier basé sur un détecteur monocal. L'alignement optique est sensible au moindre choc et dégrade le signal de photoluminescence d'une boîte quantique. Il faut donc contrôler toute fluctuation mécanique du dispositif. Le cryostat (Low Movement fabriqué par Oxford) a été choisi pour minimiser les dérives possibles de l'échantillon. La pompe à vide du cryostat et celle assurant la circulation d'Helium sont isolées du cryostat par des amortisseurs. Il faut également avoir un dispositif de détection stable : l'objectif de microscope monté sur des cristaux piézoélectriques a une très faible dérive en position. La stabilité mécanique du dispositif est au final d'une à deux heures. Les raies ne doivent donc pas être plus fines que $6\text{ }\mu\text{eV}$ pour être étudiables par notre système.

Optimisation de la fenêtre spectrale

Au cours de la thèse d'Ivan Favero, la fenêtre de filtrage du spectromètre était d'environ $150\text{ }\mu\text{eV}$ [4]. Cette valeur limite l'étude fine de la forme du profil de raie à cause de la troncature des bords de la raie par le photodétecteur. À l'aide d'un système afocal de grandissement $G = 2/5$ nous avons augmenté la fenêtre spectrale du spectromètre d'un facteur $G = 5/2$. La nouvelle fenêtre de détection vaut $440\text{ }\mu\text{eV}$.

2.3.3 Traitement des données

Nous rappelons l'expression théorique de la figure d'interférence obtenue :

$$I(\tau) = 2I_0 [1 + C(\tau) \cos(\omega_0\tau + \Phi(\tau))] \quad (2.15)$$

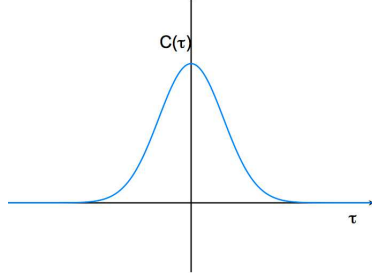
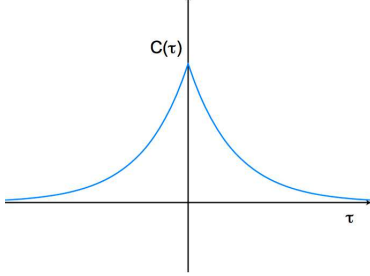
Dans l'interférogramme enregistré (voir 2.15), apparaît une partie rapidement variable correspondant à la sinusoïde $\cos(\omega_0\tau + \Phi(\tau))$ modulée par une partie lentement variable qui est le contraste $C(\tau)$. D'après la section 2.3, cette fonction est la transformée de Fourier de la densité spectrale $I(\omega - \omega_0)$.

Le contraste expérimental peut se calculer avec l'expression :

$$C(\tau) = \left\langle \left| \frac{I(\tau)}{\langle I(\tau) \rangle_{50points}} - 1 \right| \right\rangle_{20points} \quad (2.16)$$

Nous expliquons cette expression.

- Comme le signal de photoluminescence évolue légèrement au cours de l'acquisition, ces variations affectent la valeur I_0 dans l'expression 2.15. En calculant $\langle I(\tau) \rangle_{50points}$, nous obtenons l'évolution de $2I_0$ au cours de l'acquisition. Ainsi nous pouvons nous affranchir de la dérive du signal de photoluminescence en normalisant la valeur de $I(\tau)$ par $\langle I(\tau) \rangle_{50points}$. Cependant ces variations doivent être relativement lentes pour pouvoir être corrigées.
- Le contraste varie suffisamment lentement devant le pas de déplacement de la ligne à retard (quelques dizaines de fs). Il peut être obtenu en moyennant sur 20 points la norme de $\frac{I(\tau)}{\langle I(\tau) \rangle_{50points}} - 1$. Car cette fonction n'est autre que la fonction $C(\tau) \cos(\omega_0\tau + \Phi(\tau))$ apparaissant dans l'équation 2.15. En moyennant sa norme, nous supprimons la partie rapidement variable $\cos(\omega_0\tau + \Phi(\tau))$.

	Décroissance gaussienne	Décroissance exponentielle
Contraste	$C(\tau) = e^{-\frac{\tau^2}{4T^2}}$ 	$C(\tau) = e^{-\frac{ \tau }{T}}$ 
Spectre associé	$I(\omega) \propto e^{-T^2(\omega-\omega_0)^2}$	$I(\omega) = \frac{1}{(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{T^2}}$
Largeur à mi hauteur	$\Gamma = \frac{2\hbar\sqrt{\ln 2}}{T}$	$\Gamma = \frac{2\hbar}{T}$

TAB. 2.4 – Décroissance exponentielle et gaussienne et leur profil spectral associé.

Au cours de nos expériences nous avons mesuré en particulier des décroissances exponentielles ou gaussiennes du contraste $C(\tau)$ (voir tableau 2.4). Dans ces deux cas limites, les raies sont respectivement lorentziennes et gaussiennes avec des largeurs à mi-hauteur inversement proportionnelles au temps caractéristique de décroissance T défini dans le tableau 2.4.

2.4 Conclusion

Dans ce second chapitre ont été décrits les différents protocoles expérimentaux développés ou utilisés au cours de cette thèse. Dans un premier temps nous avons rappelé le principe de microphotoluminescence de boîte quantique qui doit combiner sélections spectrale et spatiale pour permettre d'étudier une boîte quantique unique. Dans une seconde partie, nous avons expliqué de quelle manière nous pouvions appliquer un champ électrique transverse aux boîtes quantiques en plaçant ces dernières dans des structures Schottky. Un tel dispositif permet de commander par la polarisation de la diode le champ électrique appliqué, mais également de contrôler la charge de la boîte quantique à l'électron près grâce au blocage de Coulomb. En étudiant l'évolution de la photoluminescence d'une boîte quantique en fonction du champ électrique appliqué, il est possible de déterminer les différents domaines d'existence des états exciton neutre et chargé. Enfin dans une dernière partie, nous avons expliqué comment nous pouvions obtenir le profil des spectres avec une résolution de $0.5 \mu eV$ grâce à la spectrométrie par transformée de Fourier.

Chapitre 3

Diffusion spectrale

Le premier chapitre s’achevait en montrant que les fluctuations de l’environnement électrostatique de la boîte pouvaient induire de la diffusion spectrale au niveau du spectre d’émission de la boîte quantique. Un tel phénomène peut réduire les possibilités d’utilisation de la boîte quantique. En régime lent de fluctuations, l’énergie du photon émis est aléatoire, ce qui se révèle très gênant si on veut utiliser les boîtes quantiques comme source de photon unique. En régime rapide de fluctuations, c’est à dire pour des fluctuations plus rapides que le temps de vie des paires électron-trou, la cohérence de toute superposition d’états de la boîte est dégradée par un déphasage aléatoire.

Pour pouvoir espérer réduire l’impact de la diffusion spectrale, il faut d’abord identifier clairement les sources de fluctuations affectant les boîtes. Avant de présenter notre étude expérimentale, il est nécessaire de modéliser l’effet de la diffusion spectrale sur la cohérence des états de la boîte quantique. Dans ce but, nous utilisons le modèle des systèmes à deux niveaux (TLS pour Two Level System) qui permet de générer un bruit quelconque en considérant comme source de fluctuation N systèmes indépendants évoluant entre deux états possibles. L’état de chaque système appelé TLS, est décrit par un processus aléatoire à deux valeurs appelé bruit télégraphique. Il est alors possible de calculer de manière classique le spectre d’émission de tout objet unique subissant les fluctuations de son environnement. Cette modélisation décrit le phénomène de diffusion spectrale au niveau des boîtes quantiques de semiconducteur [7], mais aussi dans de nombreux domaines de la physique : en physique des liquides [85], en RMN [86] ou bien encore en physique atomique [87].

Dans un premier temps, le cas d’un seul télégraphe est abordé : il permet de décrire simplement la phénoménologie de la diffusion spectrale tout en expliquant le phénomène de coalescence. Le calcul est ensuite étendu à N TLS, on montre alors que pour N suffisamment grand, la loi de distribution des fréquences tend alors vers une loi normale. La modélisation TLS tend vers le modèle de Kubo-Anderson, basé sur une modélisation gaussienne des fluctuations. Elle permet alors de rendre compte du phénomène de rétrécissement par le mouvement observé

en RMN.

3.1 Origines

3.1.1 Définition

Le phénomène de diffusion spectrale correspond à une évolution aléatoire du spectre d'émission d'objets uniques ou d'ensemble d'objets. Il est une manifestation des propriétés fluctuantes de l'environnement affectant le spectre de l'objet d'étude.

Ainsi Ambrose et Moerner en étudiant une molécule unique de pentacène dans un bain de p-terphenyl refroidi à 1.5K constatent que la raie d'émission du système présente des sauts spectraux [88]. Ils expliquent cette évolution par des fluctuations des contraintes mécaniques affectant l'émission de la molécule.

Ce phénomène s'avère gênant pour étudier des objets uniques tels que les boîtes quantiques. Ainsi Empedocles, pour les boîtes colloïdales de CdSe recouvertes d'une couche de ZnS (type coeur/coquille) [7] et Robinson [10] ou Türeci [8], dans le cas des boîtes quantiques épitaxiées mettent en évidence ce phénomène. Les résultats de Türeci et d'Empedocles sont représentés respectivement sur les figures 3.2 et 3.1. Sur la figure 3.2, issue des travaux de Türeci *et al*, nous constatons que chaque raie subit des fluctuations discrètes qui lui sont propres [8]. Sur la figure 3.1, obtenue par Empedocles *et al*, nous pouvons voir une évolution temporelle de la position spectrale mais aussi du profil de la raie de PL [7]. Dans la figure apparaissent trois spectres de la même boîte quantique obtenus à une minute d'intervalle. Sur la figure (c), la raie présente un shift de 11 meV avec une largeur à mi hauteur qui est doublée par rapport au spectre de la figure (a). Le phénomène de diffusion spectrale est un inconvénient pour l'utilisation de boîte quantique comme source de photons uniques. La longueur d'onde d'émission ne peut être définie avec rigueur et dans le cas des nanocristaux colloïdaux, la diffusion spectrale s'accompagne souvent d'un scintillement de l'émission [41].

3.1.2 Manifestation

Dans ce paragraphe nous présentons quelques manifestations du phénomène de diffusion spectrale.

Rôle de l'arrangement cristallin sur l'émission dans les verres

Si des chromophores sont placés dans des verres, il est facile de sonder l'absorption de ces systèmes par des expériences de hole burning [89]. En effectuant des mesures en fonction de la température, Small *et al* déterminent des largeurs de trou d'absorption supérieures à celles données par le T_2 du système [90].

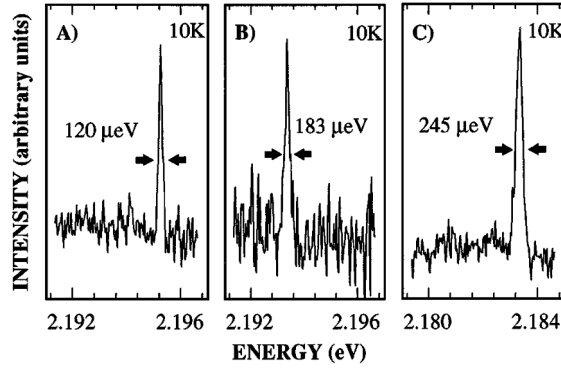


FIG. 3.1 – Trois spectres d’une même boîte quantique de CdSe pris à une minute d’intervalle [7].

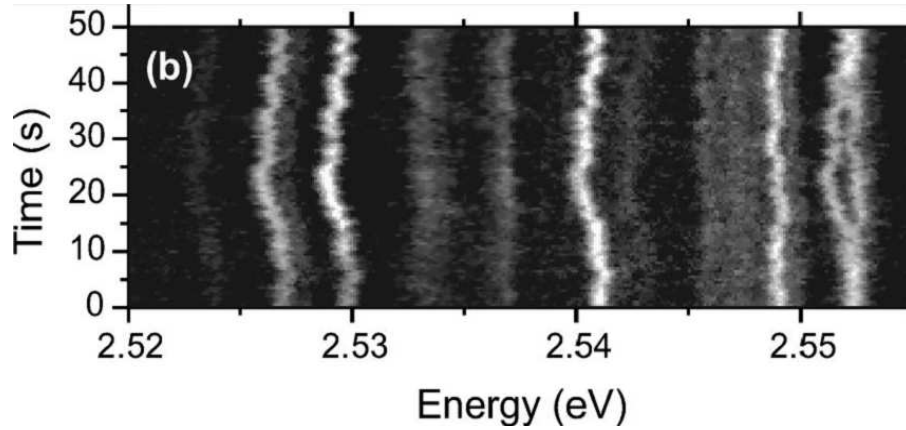


FIG. 3.2 – Evolution temporelle d’un ensemble de raies de boîtes quantiques de CdSe [8].

Il est possible d’expliquer cet élargissement du spectre d’absorption en considérant les mouvements moléculaires présents dans les verres. Dans les cristaux, l’invariance par translation du système fait que tout mouvement de l’arrangement cristallin peut être décrit en terme d’occupation de modes de phonons. Dans les systèmes désordonnés, comme les liquides ou les verres, l’invariance par translation est perdue, il existe alors une grande variété de micro-arrangements cristallins au sein de ces systèmes. Ces structures cristallines locales peuvent évoluer au cours du temps.

Du fait de ces inhomogénéités structurales, les verres se comportent de manière différente par rapport aux cristaux [91, 89]. Les chaleurs spécifiques des verres sont, par exemple, plus élevées que celles des cristaux de même composition [91]. En modélisant les sources de fluctuations de l’arrangement cristallin autour de la molécule par des systèmes à deux niveaux (modèle TLS), Schulte *et al* [85] parviennent à interpréter quantitativement les largeurs de hole burning mesurées. Leur modélisation fournit des capacités calorifiques en accord avec celles mesurées

indépendamment.

Influence du mouvement Brownien sur les spectres de RMN

Le phénomène de diffusion spectrale affecte aussi les spectres de résonance magnétique nucléaire (RMN) et induit un comportement surprenant : le rétrécissement par le mouvement.

En présence d'un champ magnétique externe B_0 , la composante S_z du spin nucléaire s'oriente selon deux directions : une parallèle, l'autre antiparallèle au champ magnétique. Ces deux états sont séparés par l'énergie ΔE de retournement de spin :

$$\Delta E = \gamma \hbar B \quad (3.1)$$

où γ est le rapport gyromagnétique et B le champ magnétique local.

Une expérience de résonance magnétique nucléaire (RMN) consiste à mesurer l'énergie de retournement ΔE . D'après l'équation 3.1, cette énergie est proportionnelle au champ magnétique local B . Or B est la somme du champ magnétique appliqué et d'un champ magnétique créé par la distribution des spins nucléaires avoisinants. En mesurant l'énergie de retournement du spin, il est alors possible d'analyser l'écrantage du champ magnétique engendré par l'environnement [86]. Dans les phases condensées, l'agitation thermique perturbe l'orientation des spins nucléaires, ce qui produit une fluctuation du champ magnétique local et donc du splitting ΔE . Le spectre de RMN est ainsi soumis au phénomène de diffusion spectrale. Ce dernier se manifeste par un élargissement inhomogène analogue à celui observé dans les verres. Ce comportement a été mis en évidence expérimentalement pour la première fois par Carr et Purcell en 1954 [92]. Cependant, des études RMN en température ont mis en évidence une phénoménologie très différente. En élevant la température, le spectre RMN devient de plus en plus fin [93, 12]. C'est le phénomène de rétrécissement par le mouvement. Les fluctuations du champ magnétique deviennent trop rapides et sont moyennées, l'élargissement inhomogène est réduit.

Etude de molécule unique

Les phénomènes de diffusion spectrale que nous venons d'évoquer affectaient des ensembles d'objets. En considérant des objets uniques, il est possible de mesurer en temps réel les fluctuations de l'environnement, si les temps d'acquisition des détecteurs ne sont pas trop grands devant les temps de fluctuations.

Si on s'intéresse au fonctionnement d'une enzyme, en étudiant les fluctuations temporelles du spectre d'émission d'une molécule unique, nous pouvons accéder à la dynamique de la réaction chimique catalysée par l'enzyme. Nous pouvons par exemple citer Lu *et al* qui étudient le fonctionnement d'une enzyme catalysant l'oxydation du cholestérol, cette molécule sera notée $E - FAD$. Cette

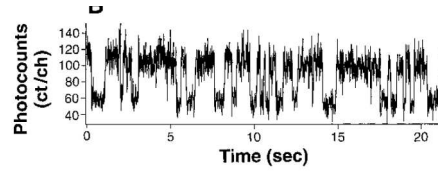


FIG. 3.3 – Evolution de l'émission de la molécule au cours du temps [9].

enzyme contient un centre fluorescent dont on peut étudier le spectre d'émission. L'évolution au cours du temps de l'intensité lumineuse émise par une molécule unique de $E - FAD$ est représentée sur la figure 3.3. On constate que cette intensité change au cours du temps par sauts aléatoires [9]. Ce phénomène peut s'expliquer si on considère que la molécule fluctue entre deux états : un état brillant et un état noir, c'est le phénomène de scintillement (*blinking*). L'état brillant est l'état $E - FAD$ et l'état noir correspond à l'état réduit $E - FADH_2$ de l'enzyme après oxydation d'un cholestérol. L'enzyme, dans son état noir (état réduit) peut alors revenir à son état brillant (état oxydé) au contact de dioxygène (voir Fig.3.4) ; chaque chute d'intensité dans la figure 3.3 correspond donc à l'oxydation d'un cholestérol. En étudiant l'émission au cours du temps de cette enzyme,

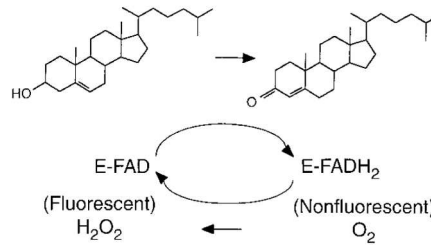


FIG. 3.4 – Changement de configuration de l'enzyme [9].

On parvient à suivre en temps réel la réaction chimique décrite dans la figure 3.4 et ainsi connaître le fonctionnement de cette enzyme.

Un changement de conformation, de configuration ou de composition d'une molécule unique est source de diffusion spectrale. Dans le cas de l'étude de molécule unique, la diffusion spectrale donne accès à la cinétique de changements d'états de la molécule.

Les molécules uniques placées dans des gels ressentent aussi les fluctuations de la matrice polymère qui les contient [88]. Nous allons décrire à présent de quelle manière l'environnement perturbe l'émission de boîtes quantiques épitaxiées.

Etude de boîte quantique unique

Le phénomène de diffusion spectrale au niveau des boîtes quantiques épitaxiées a été observé par de nombreux groupes [7, 10, 40]. Ainsi Robinson *et al*, en

étudiant des boîtes quantiques épitaxiées de InAlAs dans une matrice de GaAs [10], constatent une évolution temporelle du spectre d'émission de boîtes quantiques uniques. Cette étude est représentée sur la figure 3.5. Sur cette figure, les

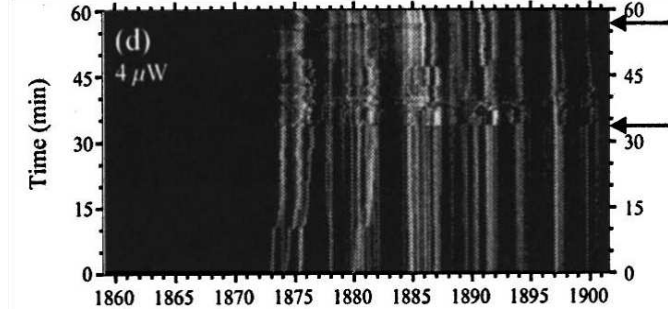


FIG. 3.5 – Evolution du spectre d'émission d'un ensemble de boîtes, entre les deux flèches la puissance d'excitation est augmentée [10].

flèches servent à indiquer les instants où la puissance est augmentée. Ainsi, jusqu'à 34 min la puissance est constante, à cet instant la densité d'excitation est alors augmentée et les fluctuations du spectre sont alors plus rapides. Robinson explique ces résultats par la présence de défauts dans l'arrangement cristallin de la couche de mouillage. Ces derniers peuvent constituer des pièges pour les charges libres. Ainsi le piégeage et le dépiégeage de charges dans les défauts provoquent des fluctuations de l'environnement électrostatique de la boîte. Du fait de l'effet Stark (voir 3.6), l'énergie de l'exciton dans la boîte dépend du champ électrique local. Si l'état de charge des pièges autour de la boîte fluctue, le spectre d'émission de la boîte quantique sera donc sujet à la diffusion spectrale.

Robinson interprète l'effet en puissance observé sur la figure 3.5 comme une

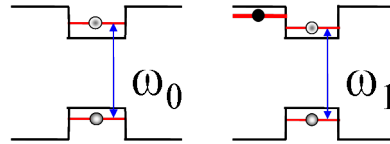


FIG. 3.6 – Modélisation de l'effet Stark sur une boîte quantique. En présence d'une charge proche, le champ électrique local est modifié, ce qui provoque par effet Stark une modification de l'énergie de recombinaison de la boîte.

photoactivation de la diffusion spectrale où augmenter la puissance d'excitation revient à créer plus de charges libres, ce qui active le piégeage et le dépiégeage.

Sur le tableau 3.1 sont résumées les différentes manifestations de la diffusion spectrale qui ont été décrites. Si on étudie des ensembles d'objets, nous sommes dans la limite stationnaire de la diffusion spectrale. Il y a élargissement inhomogène du spectre. Les largeurs à mi-hauteur mesurées sont supérieures à l'inverse du temps de décohérence du système.

Objet d'étude	Source de fluctuation	Diffusion spectrale
Ensemble de chromophores dans les verres	Réarrangement moléculaire	Elargissement inhomogène
Ensemble de spins nucléaires	Fluctuation des spins nucléaires proches	Elargissement inhomogène + Rétrécissement par le mouvement
Molécule unique	Echange d'hydrogène avec l'environnement	Scintillement de l'émission
Boîte quantique unique	Piégeage et dépiégeage de charges	Evolution de l'énergie de recombinaison

TAB. 3.1 – Différentes manifestations de la diffusion spectrale.

Dans la section suivante, nous présentons le calcul du spectre d'émission modifié par diffusion spectrale. Il est basé sur un modèle de fluctuations considérant des systèmes à deux niveaux comme sources de perturbations. Nous allons montrer en particulier que ce modèle est applicable pour l'ensemble des cas de diffusion spectrale présentés.

3.1.3 Spectre émis par un objet unique

Traitement classique de l'émission

Dans le second chapitre nous avons montré comment mesurer la fonction d'autocorrélation du champ électrique à l'aide d'un interféromètre de Michelson. Or le théorème de Wiener-Khintchine relie la fonction d'autocorrélation du champ électrique au spectre $I(\omega)$ par la relation :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\omega\tau) |E(\omega)|^2 d\omega = \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T/2}^{+T/2} E^*(t + \tau) E(t) dt \quad (3.2)$$

Si TF désigne la transformée de Fourier et $\langle \rangle_T$ est la moyenne sur un temps T . L'expression 3.2 peut se réécrire :

$$T \cdot \langle E^*(t + \tau) E(t) \rangle_T = TF(I(\omega)) \quad (3.3)$$

Pour un dipôle oscillant à la fréquence ω , le champ rayonné va osciller à la même fréquence. En posant $\mu(t)$ le moment dipolaire du système à l'instant t , nous allons voir dans la suite que la fonction d'autocorrélation du dipôle $\langle \mu^*(t + \tau) \mu(t) \rangle_T$ ou du champ électrique rayonné $\langle E^*(t + \tau) E(t) \rangle_T$ sont déterminées par l'accumulation de phase modifiée par les variations de pulsation.

Effets des fluctuations sur la cohérence du système

Comme le système subit des fluctuations de son environnement, la fréquence de transition du système à deux niveaux est une variable aléatoire $\omega_{ab}(t)$. Dans un traitement classique de l'émission, l'évolution du dipôle $\mu(t)$ est décrite par l'équation différentielle :

$$\frac{d\mu(t)}{dt} = i\omega_{ab}(t)\mu(t) \quad (3.4)$$

ce qui peut être intégré en :

$$\mu(t) = \mu(0) \exp(i \int_0^t \omega_{ab}(\theta) d\theta) \quad (3.5)$$

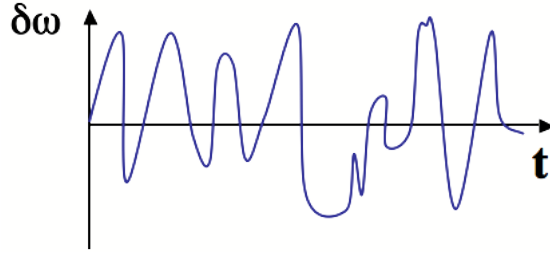


FIG. 3.7 – Evolution de $\delta\omega(t)$

$\omega_{ab}(t)$ peut être décomposée selon l'expression :

$$\omega_{ab}(t) = \omega_0 + \delta\omega(t) \quad (3.6)$$

où ω_0 est la valeur moyenne dans le temps $\langle \omega_{ab}(t) \rangle_T$ et $\delta\omega(t)$ sa partie fluctuante. Un exemple d'évolution temporelle de cette dernière est décrite sur la figure 3.7. La fonction d'autocorrélation du dipôle s'écrit :

$$\langle \mu^*(t+\tau)\mu(t) \rangle_T = |\mu_0|^2 \exp(-i\omega_0\tau) \Phi(\tau) \quad (3.7)$$

où $\Phi(\tau)$ est la fonction dite de relaxation du système. Elle est décrite par l'expression :

$$\Phi(\tau) = \left\langle \exp \left(i \int_0^\tau d\theta \delta\omega(\theta) \right) \right\rangle_T \quad (3.8)$$

Nous obtenons une relation analogue pour l'autocorrélation du champs :

$$\langle E^*(t+\tau)E(t) \rangle_T = |E_0|^2 \exp(-i\omega_0\tau) \Phi(\tau) \quad (3.9)$$

La fonction $\Phi(\tau)$ vérifie donc l'égalité :

$$|\Phi(\tau)| = \frac{|\langle E^*(t+\tau)E(t) \rangle_T|}{E_0^2} \quad (3.10)$$

D'après l'égalité 3.3 nous trouvons :

$$|\Phi(\tau)| = \frac{|I(\omega)|}{TE_0^2} \quad (3.11)$$

Or dans le dénominateur de cette expression on reconnaît la définition de $I_0 = TE_0^2$ du chapitre 2 (voir Eq.2.8 p.52). L'expression précédente se simplifie :

$$|\Phi(\tau)| = \frac{|I(\omega)|}{I_0} \quad (3.12)$$

Nous reconnaissons la définition de la fonction contraste $C(\tau)$ qui apparaît dans l'égalité 2.14 p.52 du chapitre 2. Nous pouvons conclure :

$$|\Phi(\tau)| = C(\tau) \quad (3.13)$$

Ainsi le spectre $I(\omega)$ et le contraste $C(\tau)$ se déduisent de $\Phi(\tau)$ selon les formules :

$$|\Phi(\tau)| = C(\tau) = |TF(I(\omega))| \quad (3.14)$$

Comme $\Phi(\tau)$ est une valeur moyenne dans le temps, il est indispensable de connaître la loi de probabilité $P(\delta\omega)$ pour pouvoir déterminer le spectre et le contraste associé. Dans la section suivante nous allons définir la distribution de probabilité décrivant la variable aléatoire $\delta\omega(t)$.

3.2 Modélisation de la diffusion spectrale par un bruit télégraphique

A partir des travaux de Kubo [94], d'Anderson [38] et de Burstein [95, 96], Eberly, Wokiewicz et Shore développent un modèle de fluctuations basé sur des systèmes à deux niveaux fluctuants (Modèle TLS) en nombre arbitraire, pour reproduire théoriquement les fluctuations d'un rayonnement laser [11]. Avant de définir cette modélisation nous allons rappeler quelques définitions de processus aléatoires qui seront utilisées dans la suite de ce chapitre.

3.2.1 Rappels de probabilité

Processus stochastique

Un processus stochastique décrit l'évolution dans le temps d'une variable aléatoire $X(t)$, t appartenant à l'ensemble T . Si l'ensemble T est dénombrable il s'agit d'un processus discret, sinon il s'agit d'un processus continu. En notant x une valeur possible de X , le processus est stationnaire si la loi de distribution $P(x, t)$ est indépendante du temps ($P(x, t) = P(x)$).

Chaîne de Markov

Une chaîne de Markov est un processus stochastique pour lequel l'état du système à un temps $t > t_0$ ne dépend que de l'état du système à l'instant t_0 . Pour un processus stochastique discret (X_1, X_2, X_n) où $X_n = X(t_n)$, la propriété markovienne implique que connaissant la valeur de X_n (pour tout n), la valeur de X_{n+1} est indépendante de l'état du système à des instants antérieurs à t_n . Cette propriété s'écrit :

$$P(X_{n+1} = x | X_0, X_1, X_2, \dots, X_n) = P(X_{n+1} = x | X_n) \quad (3.15)$$

où $P(A|B)$ est la probabilité conditionnelle de réaliser l'évènement A sachant que B lui est réalisé.

Bruit du télégraphe

Le bruit dit "du télégraphe", est un processus Markovien dichotomique dans lequel le système évolue aléatoirement par saut entre deux valeurs, $+\alpha$ et $-\alpha$ par exemple. Sa valeur moyenne est nulle :

$$\langle X(t) \rangle = 0 \quad (3.16)$$

Le bruit du télégraphe est caractérisé par l'équiprobabilité des valeurs. Soit $P(\alpha, t | \alpha, t_0)$, la probabilité que le système dans l'état α à l'instant t_0 soit toujours dans l'état α à l'instant t . L'évolution de cette probabilité est décrit par l'équation

$$\frac{dP(\alpha, t | \alpha, t_0)}{dt} = -\frac{1}{T_{\downarrow}} P(\alpha, t | \alpha, t_0) \quad (3.17)$$

où T_{\downarrow} est défini comme le temps moyen de passage de l'état $+\alpha$ à $-\alpha$. T_{\downarrow} peut être différent du temps de passage T_{\uparrow} de l'état $-\alpha$ à $+\alpha$.

Processus de Poisson

C'est un processus stochastique, dans le cas général non stationnaire, dans lequel la variable aléatoire décrit le nombre n de fois où un évènement réalisé entre l'instant 0 et l'instant t . Le processus de Poisson est décrit par la distribution de probabilité d'avoir n occurrences pendant l'intervalle t :

$$P(n, t) = \frac{(\gamma t)^n}{n!} \exp(-\gamma t) \quad (3.18)$$

Dans cette expression, le paramètre γ est le nombre moyen d'évènements par unité de temps. On peut définir alors le temps moyen entre chaque saut :

$$T = \frac{1}{\gamma} \quad (3.19)$$

Processus gaussien

Un processus gaussien est un processus $X(t)$ caractérisé par une loi de probabilité $P(x, t)$ qui s'exprime uniquement selon des fonctions gaussiennes à une ou plusieurs variables. Un processus gaussien est entièrement déterminé par sa moyenne $\langle X(t) \rangle$ et sa fonction d'autocorrélation $\langle X(t_2) X(t_1) \rangle$ [97]. Un tel processus peut être stationnaire ou non. Nous étudions dans la suite des effets stationnaires, un processus markovien de bruit gaussien stationnaire est appelé processus de Orstein-Uhlenbeck.

Processus de Orstein-Uhlenbeck (O-U)

En prenant une valeur moyenne nulle $\langle X(t) \rangle = 0$, il est décrit par la loi gaussienne de probabilité indépendante du temps :

$$P(x, t) = P(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\Sigma^2}} \exp \left[-\frac{x^2}{2\Sigma^2} \right] \quad (3.20)$$

La variance de cette loi de probabilité vaut Σ^2 . Comme tout processus gaussien, il est caractérisé par sa fonction d'autocorrélation $\langle X(t_2) X(t_1) \rangle$. En posant τ_c le temps de corrélation de ce processus, cette fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$\langle X(t_2) X(t_1) \rangle = \Sigma^2 \exp \left(-\frac{|t_2 - t_1|}{\tau_c} \right) \quad (3.21)$$

3.2.2 Système en interaction avec un TLS

Modèle des systèmes à deux niveaux

Ce modèle considère comme source de fluctuations un ensemble de systèmes à deux niveaux fluctuants. En passant d'un état à l'autre, chaque système TLS change l'énergie de l'objet étudié.

Description du modèle de fluctuation

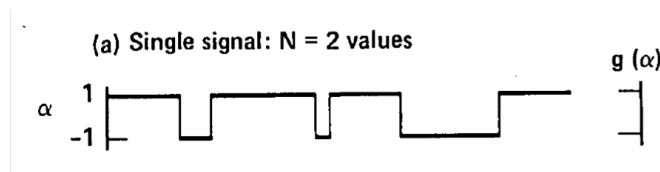


FIG. 3.8 – Evolution de $\delta\omega(t)$ dans le cas d'un seul TLS [11].

Nous allons d'abord considérer une unique source de fluctuations S et décrire l'effet de la fluctuation de fréquence sur le spectre d'émission du dipôle.

L'énergie du dipôle évolue autour de sa valeur moyenne ω_0 . Sa partie variable $\delta\omega(t)$ oscille par sauts aléatoires entre deux valeurs, $+\alpha$ et $-\alpha$. Ces deux valeurs correspondent aux deux états possibles de S . Dans un premier temps, les deux états de fréquence sont supposés équiprobables, nous présenterons dans le chapitre 4 le cas d'états non équiprobables.

La loi de probabilité décrivant ce processus est donc :

$$P(\delta\omega) = \frac{1}{2}\delta_{\delta\omega,\alpha} + \frac{1}{2}\delta_{\delta\omega,-\alpha} \quad (3.22)$$

Si $\delta\omega(0)$ est l'état initial de $\delta\omega$, nous pouvons écrire qu'à un instant t ultérieur, $\delta\omega(t)$ vaut :

$$\delta\omega(t) = (-1)^{n(t,0)}\delta\omega(0) \quad (3.23)$$

où $n(t,0)$ est le nombre de sauts entre l'instant 0 et l'instant t . Comme le système est décrit par un processus télégraphique, $n(t,0)$ suit par définition une distribution de Poisson. La valeur moyenne du nombre de sauts effectués entre l'instant initial et t est proportionnelle à la durée t et vaut :

$$\langle n(t,0) \rangle = \frac{|t|}{T} \quad (3.24)$$

où T est le temps moyen entre deux sauts.

La fonction d'autocorrélation du décalage fréquentiel $\delta\omega(t)$ vaut alors :

$$\langle \delta\omega(t+\tau)\delta\omega(t) \rangle = \alpha^2 \langle (-1)^{n(t+\tau,0)}(-1)^{n(t,0)} \rangle \quad (3.25)$$

$$= \alpha^2 \langle (-1)^{n(t+\tau,t)} \rangle \quad (3.26)$$

Si le nombre de saut est un processus poissonien de paramètre $\gamma = 1/T$, la probabilité d'avoir n sauts entre 0 et t vaut $\frac{(\gamma t)^n}{n!} \exp(-\gamma t)$. La fonction d'autocorrélation de $\delta\omega$ est égale à :

$$\langle \delta\omega(t+\tau)\delta\omega(t) \rangle = \alpha^2 \sum_{n_i=0}^{\infty} (-1)^{n_i} \frac{(\gamma |\tau|)^{n_i}}{n_i!} \exp(-\gamma |\tau|) \quad (3.27)$$

$$= \alpha^2 \sum_{n_i=0}^{\infty} \left[\frac{-|\tau|}{T} \right]^{n_i} \frac{1}{n_i!} \exp\left(-\frac{|\tau|}{T}\right) \quad (3.28)$$

$$= \alpha^2 \exp\left(-\frac{2}{T} |\tau|\right) \quad (3.29)$$

D'après l'équation 3.21, le temps de corrélation τ_c des fluctuations vaut alors :

$$\tau_c = \frac{T}{2} \quad (3.30)$$

Dans ce modèle de fluctuation, Wodkiewicz *et al* montrent que la fonction de relaxation du dipôle $\Phi(\tau)$ est reliée à $\langle \delta\omega(t+\tau)\delta\omega(t) \rangle$ par l'équation intégrodifférentielle suivante [98] :

$$\frac{\partial\phi(\tau)}{\partial\tau} = - \int_0^\tau ds \langle \delta\omega(\tau)\delta\omega(s) \rangle \Phi(s) \quad (3.31)$$

En utilisant l'auto-corrélation de $\delta\omega$ obtenue dans l'égalité 3.29, l'égalité 3.31 devient :

$$\frac{\partial\phi(\tau)}{\partial\tau} = -\alpha^2 \int_0^\tau ds \exp\left(-\frac{2}{T}|\tau-s|\right) \Phi(s) \quad (3.32)$$

La solution d'une telle équation différentielle est alors :

$$\Phi(\tau) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T\lambda} + 1 \right) \exp\left(-\left(\left(\frac{1}{T}\right) - \lambda\right)|\tau|\right) - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T\lambda} - 1 \right) \exp\left(-\left(\left(\frac{1}{T}\right) + \lambda\right)|\tau|\right) \quad (3.33)$$

avec $\lambda^2 = \frac{1}{T^2} - \alpha^2$.

Il est alors possible de calculer le contraste $C(\tau)$, qui est la norme de $\Phi(\tau)$ donnée par l'expression 3.33.

Nous pouvons aussi obtenir le spectre $I(\omega)$ du champ électrique rayonné [98] :

$$I(\omega) \propto 2 \left(T F^{-1} \langle E(t) E^*(t+\tau) \rangle \right) \quad (3.34)$$

$$\propto 2 \left(\int_0^\infty d\tau \exp(i\omega\tau) \exp(-i\omega_0\tau) \Phi(\tau) \right) \quad (3.35)$$

$$\propto \frac{\frac{8\pi\alpha^2}{T} |E_0|^2}{(\omega - \omega_0)^4 + \left(\frac{4}{T^2} - 2\alpha^2\right)(\omega - \omega_0)^2 + \alpha^4} \quad (3.36)$$

$$(3.37)$$

Les évolutions de $C(\tau)$ et de $I(\omega)$ dépendent du signe de $\lambda^2 = 1/T^2 - \alpha^2$.

Sur les figures 3.9 et 3.10 sont représentées respectivement l'évolution de $C(\tau)$ et celle de $I(\omega)$ pour différentes valeurs de αT . Pour de grandes valeurs de αT , le contraste $C(\tau)$ présente des oscillations (graphiques (c) et (d) de la figure 3.9). Il apparaît que plus le produit αT est proche de 1 plus le battement est amorti. Dans le domaine spectral ces battements se traduisent par la présence d'un doublet qui est d'autant plus marqué que αT est grand devant 1 (graphiques (c) et (d) de la figure 3.10).

Les graphiques (b) des figures 3.9 et 3.10 représentent le cas limite où $\alpha T = 1$, et les battements du doublet sont à peine visibles. Si αT est inférieur à 1, nous pouvons voir sur le graphique (a) de la figure 3.9 qu'il n'y a plus de battement. Il n'apparaît donc plus de doublet dans la figure 3.10(a). Nous allons interpréter ces courbes en étudiant les comportements limites de $\Phi(\tau)$. Rappelons que l'expression de λ^2 définie dans l'égalité 3.33 est :

$$\lambda^2 = \frac{1}{T^2} - \alpha^2 = \frac{1}{T^2} (1 - (\alpha T)^2) \quad (3.38)$$

Deux cas limites ressortent :

- $\alpha T \gg 1$ et λ^2 est négatif.
- $\alpha T \ll 1$ et λ^2 est positif.

D'après l'expression de la fonction de relaxation (Eq.3.33), la nature de λ (imaginaire ou réel) change radicalement les variations de $\Phi(\tau)$. Les deux cas vont être développés.

Cas $\alpha T \gg 1$

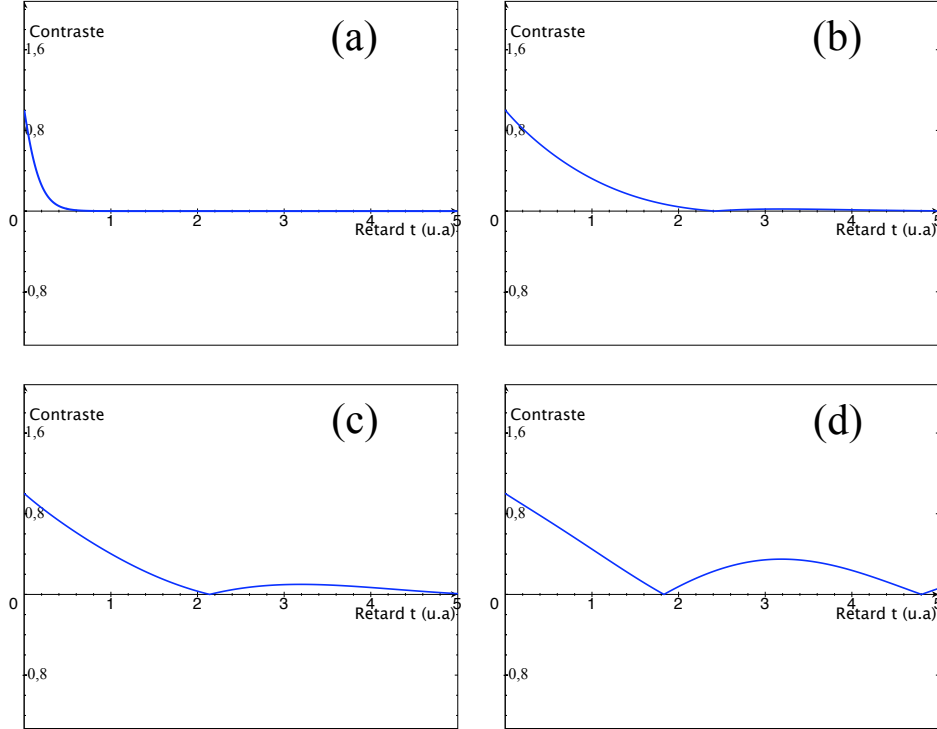


FIG. 3.9 – $C(\tau)$ calculé à partir du modèle à un seul TLS pour différentes valeurs de αT . (a) $\alpha T = 0.1$, (b) $\alpha T = 1$, (c) $\alpha T = 2$ et (d) $\alpha T = 10$.

Dans ce cas où λ^2 est négatif, les racines sont des nombres imaginaires purs. Dans l'approximation $\alpha T \gg 1$ les racines de λ^2 sont :

$$\lambda \simeq \pm i\alpha \left(1 - \frac{1}{2\alpha^2 T^2} \right) \quad (3.39)$$

La fonction $C(\tau)$ sera la somme de deux exponentielles complexes :

$$C(\tau) \simeq \left| \sum_{\delta=\pm 1} \frac{1}{2} \left(1 + \frac{i\delta}{\alpha T}\right) \exp \left(- \left(\frac{1}{T} + i\delta\alpha \right) |\tau| \right) \right| \quad (3.40)$$

$$\simeq \left| \frac{1}{2} \exp \left(- \frac{|\tau|}{T} \right) (\exp(+i\alpha |\tau|) + \exp(-i\alpha |\tau|)) \right| \quad (3.41)$$

$$\simeq \left| \exp \left(- \frac{|\tau|}{T} \right) \cos(\alpha\tau) \right| \quad (3.42)$$

$$(3.43)$$

Le cas ci-dessus ($\alpha T \gg 1$) correspond à la figure 3.10(d). Quand αT diminue, c'est à dire quand les fluctuations deviennent rapides devant $\frac{1}{\alpha}$, le doublet apparaît de moins en moins bien. Au contraire, dans la limite d'un temps moyen de saut T infiniment grand, le spectre d'émission correspond exactement à la distribution spectrale des états du bruit télégraphique. De manière plus générale, lorsque $\alpha T \gg 1$, le doublet est composé de deux raies distantes de 2α et d'une largeur à mi hauteur donnée par :

$$\Gamma = \frac{2\hbar}{T} \quad (3.44)$$

Cas $\alpha T \ll 1$

Par contre en se plaçant dans le cas où $\alpha T \ll 1$, on peut voir que λ^2 est positif, ses racines sont :

$$\lambda = \frac{1}{T} (1 - \alpha^2 T^2)^{\frac{1}{2}} \quad (3.45)$$

$$\cong \frac{1}{T} - \frac{\alpha^2 T}{2} \quad (3.46)$$

Le contraste dans ce cas devient :

$$C(\tau) \cong \frac{1}{2} \left(2 \exp \left(- \frac{\alpha^2 T}{2} |\tau| \right) - \frac{\alpha^2 T^2}{2} \exp \left(- \frac{2\tau}{T} \right) \right) \quad (3.47)$$

$$\cong \exp \left(- \frac{\alpha^2 T}{2} |\tau| \right) \quad (3.48)$$

Ce cas correspond à une décroissance monotone, sans battement, qui correspond à la figure 3.9(a). Dans le domaine spectral (Fig. 3.10(a)), il n'y a plus de doublet : les deux raies ont complètement coalescé. Le système fluctue tellement rapidement que les fluctuations se moyennent. Les états associés aux fréquences $\omega_0 + \alpha$ et $\omega_0 - \alpha$ n'existent pas assez longtemps pour que le système ait effectué un cycle optique à l'une de ces fréquences. Les deux fréquences ne peuvent donc apparaître dans le spectre, seule la fréquence moyenne ω_0 est définie. Ce phénomène de coalescence

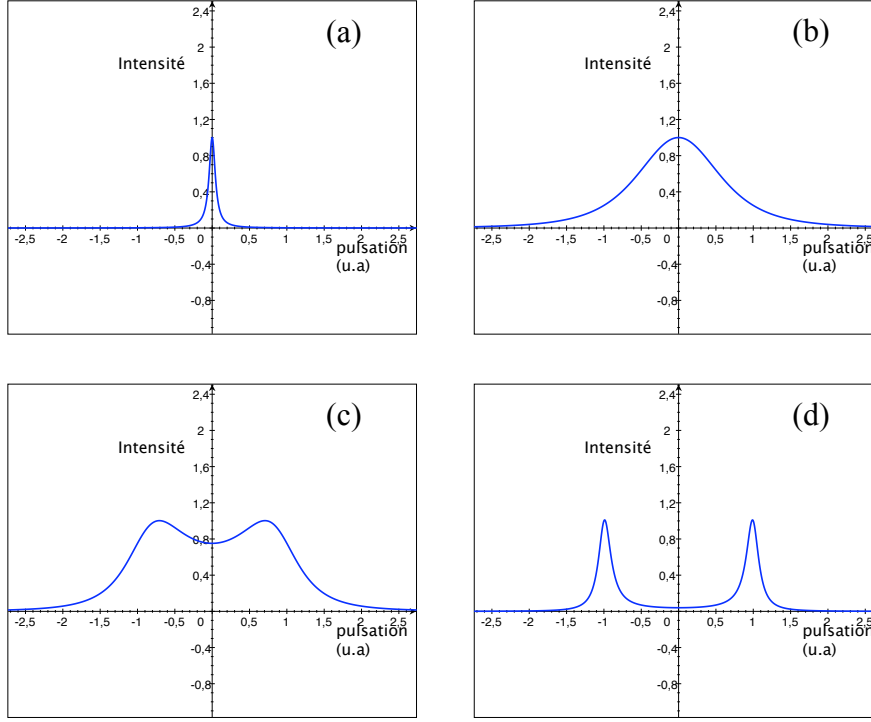


FIG. 3.10 – $S(\omega)$ calculé à partir du modèle à un seul TLS pour différentes valeurs de αT . (a) $\alpha T = 0.1$, (b) $\alpha T = 1$, (c) $\alpha T = 2$ et (d) $\alpha T = 10$.

est une manifestation élémentaire du rétrécissement par le mouvement.
La largeur à mi-hauteur associée à ce spectre vaut :

$$\Gamma = \hbar \alpha^2 T \quad (3.49)$$

Plus αT est petit, plus Γ diminue.

Conclusion

Ainsi une même perturbation peut engendrer des spectres très différents du fait de la dynamique des fluctuations. Pour des fluctuations lentes, $\alpha T \gg 1$, le spectre obtenu correspond à la distribution statistique de l'énergie du système à deux niveaux. Le spectre est constitué d'un doublet de raies de profil lorentzien et de largeur à mi hauteur $\Gamma = 2\hbar/T$. Par contre si les fluctuations sont rapides, les deux raies coalescent en une seule raie de largeur à mi-hauteur $\Gamma = \hbar \alpha^2 T$. Nous allons considérer dans la section suivante le cas de plusieurs TLS en interaction avec le dipôle étudié.

3.2.3 Bruit pré-gaussien

L'utilisation de N TLS permet de générer des processus de fluctuation plus complexes. Dans la limite d'un grand nombre N de TLS, ce processus de bruit a pour limite un processus gaussien appelé aussi processus de Kubo-Anderson. Le processus construit à partir d'un nombre arbitraire de TLS est alors appelé bruit pré-gaussien par Eberly et collaborateurs [11]. Dans cette section nous allons développer le calcul de la fonction de relaxation associée.

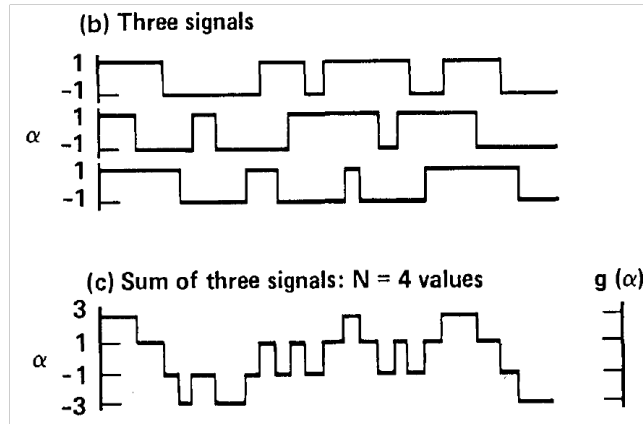


FIG. 3.11 – Deux représentations possibles pour un même bruit. Les trois TLS de la première figure produisent un processus de bruit évoluant entre 4 valeurs [11].

Nous considérons N TLS identiques, décorrélés participant à la génération du bruit prégaussien qui affecte la fréquence d'évolution du dipôle. Cette fréquence est décrite par l'expression :

$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t) \quad (3.50)$$

avec :

$$\delta\omega(t) = \sum_{i=1;N} \delta\omega_i(t) \quad (3.51)$$

où $\delta\omega_i(t)$ est le décalage spectral produit par le TLS i évoluant entre $+\alpha$ et $-\alpha$. Le bruit résultant sera un bruit télégraphique à $N+1$ valeurs ($-N\alpha, -N\alpha + 2\alpha, \dots, 0, \dots, N\alpha - 2\alpha, N\alpha$). Sur la figure 3.11, trois TSL sont considérés et les fluctuations engendrées par chaque TLS sont représentées dans le graphique supérieur de cette figure. Le second graphique représente l'évolution de $\delta\omega(t)$, somme des trois processus.

3.2.4 Calcul de la fonction de relaxation

La fonction de relaxation $\Phi_N(\tau)$ s'écrit :

$$\Phi_N(\tau) = \left\langle \exp i \int_0^\tau \delta\omega(t) dt \right\rangle_T \quad (3.52)$$

avec

$$\delta\omega(t) = \sum_{i=1;N} \delta\omega_i(t) \quad (3.53)$$

en développant l'expression 3.52, $\Phi_N(\tau)$ s'écrit :

$$\Phi_N(\tau) = \left\langle \exp i \int_0^\tau \sum_{i=1;N} \delta\omega_i(t) dt \right\rangle_T = \left\langle \prod_{i=1;N} \exp i \int_0^\tau \delta\omega_i(t) dt \right\rangle_T \quad (3.54)$$

L'hypothèse des TLS décorrélés permet d'utiliser la propriété suivante.

Si A et B sont des processus décorrélés, pour toute fonction f et g on a la relation :

$$\langle f(A) * g(B) \rangle = \langle f(A) \rangle \langle g(B) \rangle \quad (3.55)$$

En utilisant cette propriété, l'expression 3.54 peut se réécrire :

$$\left\langle \prod_{i=1;N} \exp i \int_0^\tau \delta\omega_i(t) dt \right\rangle_T = \prod_{i=1;N} \left\langle \exp i \int_0^\tau \delta\omega_i(t) dt \right\rangle_T \quad (3.56)$$

Ainsi la fonction de relaxation du dipôle en interaction avec N TLS décorrélés est simplement le produit des N fonctions de relaxation Φ_{1_i} calculées à partir d'un seul TLS :

$$\Phi_N(\tau) = \prod_{i=1;N} \Phi_{1_i}(\tau) \quad (3.57)$$

où Φ_{1_i} est la fonction de relaxation du TLS i . Dans l'hypothèse où les N TLS sont identiques, la fonction de relaxation prend la forme suivante :

$$\Phi_N(\tau) = \left[\frac{1}{2} \left(\frac{1}{T\lambda} + 1 \right) \exp(-((1/T) - \lambda)|\tau|) - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T\lambda} - 1 \right) \exp(-((1/T) + \lambda)|\tau|) \right]^N \quad (3.58)$$

3.2.5 Théorème de la limite centrale

Wodkiewicz *et al* montrent que la fonction de relaxation $\Phi_N(\tau)$ de l'expression 3.58 tend vers la fonction de relaxation obtenue par Kubo et Anderson à partir d'un bruit gaussien [94, 38]. Cette constatation est une manifestation directe du théorème de la limite centrale dans le cadre de la diffusion spectrale.

La chaîne de Markov à N éléments décrivant le décalage spectral tend vers un processus continu gaussien, stationnaire, caractérisé par une loi de distribution gaussienne $P(\delta\omega)$ [97]. Dans la section suivante est exposé le calcul de la fonction de relaxation en modélisant l'évolution de l'environnement par un processus gaussien : c'est le modèle de Kubo-Anderson.

3.3 Modèle de Kubo-Anderson

En 1947, Bloembergen met en évidence en RMN le fait que les fluctuations des spins nucléaires provoquent un élargissement du spectre d'absorption [93]. En 1954, Anderson et Kubo, en utilisant un régime de fluctuation gaussienne de $\omega(t)$, parviennent à expliquer les résultats observés par Bloembergen. Nous allons décrire ce modèle.

Le processus décrivant l'évolution de $\delta\omega(t)$ est un processus Gaussien, ce processus est entièrement décrit par son écart-type Σ et son temps de corrélation τ_c tels que :

$$\langle \delta\omega(t) \delta\omega(0) \rangle = \Sigma^2 \exp\left(-\frac{|t|}{\tau_c}\right) \quad (3.59)$$

La fonction de corrélation $\Phi(\tau)$ peut être calculée exactement par la méthode des cumulants [37, 99] et son expression est :

$$\Phi(\tau) = \exp\left[-i \int_0^\tau dt \langle \delta\omega(t) \rangle + \frac{i^2}{2!} \int_0^\tau dt \int_0^\tau dt' \langle \delta\omega(t) \delta\omega(t') \rangle + \dots\right] \quad (3.60)$$

Dans l'expression 3.60 apparaissent les moments d'ordre 1 $\langle \delta\omega(t) \rangle$, et d'ordre 2 $\langle \delta\omega(t) \delta\omega(t') \rangle$, de la variable aléatoire $\delta\omega(t)$. Les termes non représentés dans l'expression contiennent des moments d'ordre supérieur.

$\delta\omega(t)$ étant un processus gaussien, les moments d'ordre supérieur à 2 de cette variable sont identiquement nuls [97]. Ainsi l'égalité précédente se réduit aux seuls termes présentés.

Comme $\langle \delta\omega(t) \rangle = 0$, l'expression de $\Phi(\tau)$ est :

$$\Phi(\tau) = \exp\left[-\frac{1}{2} \int_0^\tau dt \int_0^\tau dt' \langle \delta\omega(t) \delta\omega(t') \rangle\right] \quad (3.61)$$

$$= \exp\left[-\int_0^\tau dt (\tau - t) \langle \delta\omega(t) \delta\omega(0) \rangle\right] \quad (3.62)$$

En considérant l'égalité 3.59, l'expression 3.61 de $\Phi(\tau)$ devient :

$$\Phi(\tau) = \exp\left[-\int_0^\tau dt (\tau - t) \Sigma^2 \exp\left(-\frac{|t|}{\tau_c}\right)\right] \quad (3.63)$$

$$\Phi(\tau) = \exp\left[-\Sigma^2 \tau_c^2 \left(\exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_c}\right) + \frac{|\tau|}{\tau_c} - 1\right)\right] \quad (3.64)$$

En considérant un processus gaussien pour les fluctuations, la fonction de relaxation se calcule donc sans approximation et elle est donnée dans l'égalité 3.64. Elle est appelée fonction de Kubo et correspond à la limite lorsque N tend vers l'infini de $\Phi_N(\tau)$ (décrite dans la formule 3.58) [11]. Nous allons à présent étudier les comportements limites de cette fonction de relaxation et les spectres correspondants.

3.3.1 Rôle de $\Sigma\tau_c$ sur la nature du spectre d'émission

Evolution de la fonction de relaxation

Nous étudions à présent les variations de $\Phi(\tau)$ aux temps longs et courts :

- $\tau \ll \tau_c$ la fonction de relaxation $\Phi(\tau)$ décrite en 3.64 peut se simplifier :

$$\Phi_G(\tau) = \exp\left(-\frac{1}{2}\Sigma^2\tau^2\right) \quad (3.65)$$

Aux temps courts, la fonction de relaxation a une décroissance gaussienne.

- $\tau \gg \tau_c$ la fonction de relaxation s'écrit :

$$\Phi_L(\tau) = \exp(-\Sigma^2\tau_c|\tau|) \quad (3.66)$$

Aux temps longs, la fonction de relaxation est à décroissance exponentielle. Sur la figure 3.12, est représentée l'évolution de la fonction de relaxation pour trois valeurs de $\Sigma\tau_c$ différentes. On peut voir sur cette figure, où $\Phi(\tau)$ est représentée en fonction de τ/τ_c , que les fonctions Φ_L (tirets) et Φ_G (tirets-points) se coupent en $\tau = 2\tau_c$ pour une valeur de la fonction de relaxation égale à $e^{-2\Sigma^2\tau_c^2}$. Nous calculons cette valeur pour les trois cas représentés dans la figure 3.12.

- Si $\Sigma\tau_c = 0.2$, $e^{-2\Sigma^2\tau_c^2} = 0.92$
- Si $\Sigma\tau_c = 1$, $e^{-2\Sigma^2\tau_c^2} = 0.37$
- Si $\Sigma\tau_c = 8$, $e^{-2\Sigma^2\tau_c^2} = 10^{56}$

Si nous comparons $\Phi(\tau)$ (trait plein) à ces asymptotes $\Phi_L(\tau)$ et $\Phi_G(\tau)$ aux temps longs et courts, nous constatons que pour $\Sigma\tau_c = 0.5$ (graphique (a)), $\Phi(\tau)$ est globalement égale à son asymptote lorentzienne $\Phi_L(\tau)$ et pour $\Sigma\tau_c = 1.5$ (graphique (c)), $\Phi(\tau)$ est globalement égale à son asymptote gaussienne $\Phi_G(\tau)$.

Nature des spectres

Dans le domaine spectral, nous pouvons donc conclure que :

- $\Sigma\tau_c \gg 1$ (régime des perturbations lentes), la *décroissance gaussienne* de $\Phi(\tau)$ correspond à un profil spectral *Gaussien* :

$$I(\omega - \omega_0) = \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2\Sigma^2}\right) \quad (3.67)$$

La largeur à mi hauteur vaut dans cette limite :

$$\Gamma_G = 2\hbar\sqrt{2\ln 2}\Sigma \quad (3.68)$$

- $\Sigma\tau_c \ll 1$ (régime des perturbations rapides), la *décroissance exponentielle* de $\Phi(\tau)$ correspond à un profil spectral *Lorentzien* :

$$I(\omega - \omega_0) = \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + \Sigma^2\tau_c} \quad (3.69)$$

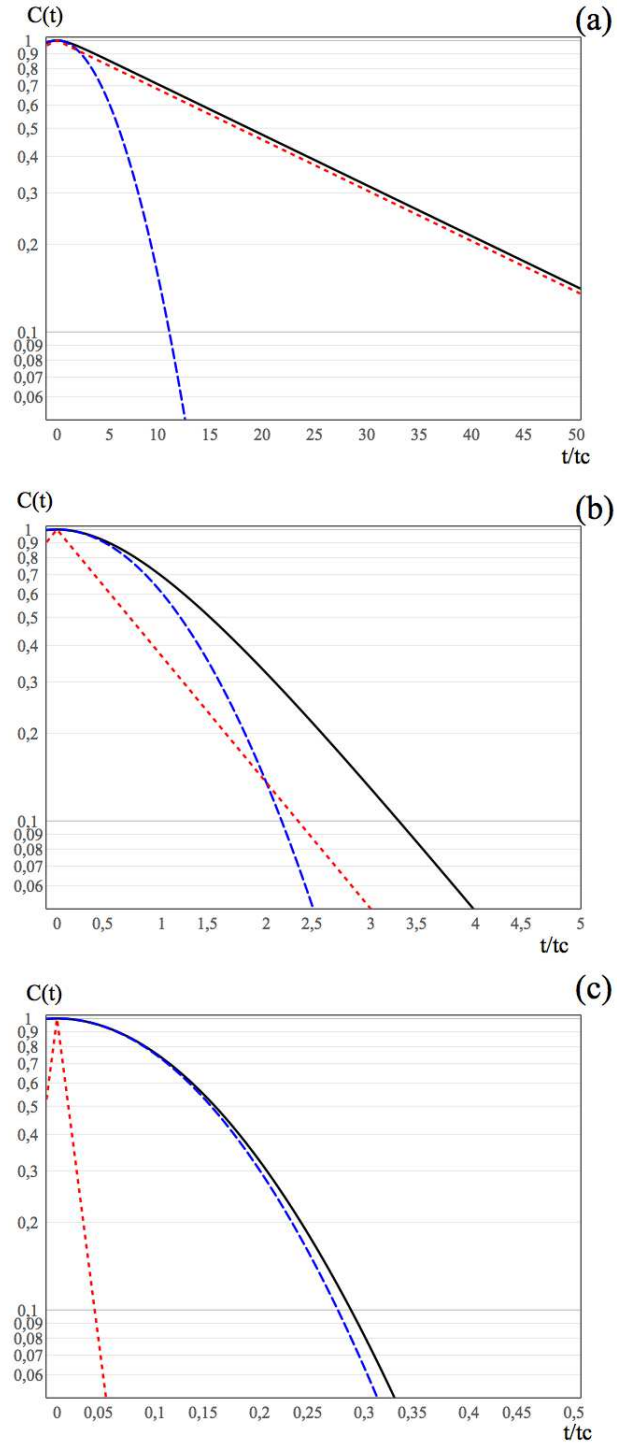


FIG. 3.12 – Evolution du contraste (trait plein) pour $\Sigma\tau_c=0.2$ (fig (a)), 1 (fig (b)) et 8 (fig (c)). L'approximation gaussienne est représentée (tiret) ainsi que l'approximation lorentzienne (pointillé).

La largeur à mi hauteur vaut :

$$\Gamma_L = 2\hbar\Sigma^2\tau_c \quad (3.70)$$

Ainsi deux spectres différents peuvent être obtenus suivant la valeur de $\Sigma\tau_c$. Quand les fluctuations sont suffisamment lentes $\Sigma\tau_c \gg 1$, le profil spectral est gaussien. Ce profil reflète exactement la distribution gaussienne $P(\delta\omega)$ caractérisant les fluctuations de la fréquence $\omega(t)$ de l'oscillateur. La largeur à mi hauteur est uniquement proportionnelle à l'écart-type des fluctuations. C'est la situation $\alpha T \gg 1$ généralisée à un grand nombre de TLS.

Par contre, quand les fluctuations sont rapides $\Sigma\tau_c \ll 1$, le profil spectral devient lorentzien, il ne correspond plus à la distribution gaussienne $P(\delta\omega)$. La largeur à mi-hauteur est diminuée d'un facteur $2\sqrt{2\ln 2}/(\Sigma\tau_c) < 1$. C'est le phénomène de rétrécissement par le mouvement, généralisation de la coalescence quand N tend vers l'infini. Nous allons détailler dans la section suivante ce phénomène.

3.3.2 Régime de rétrécissement par le mouvement

Les premières manifestations expérimentales de rétrécissement par le mouvement ont été obtenus en 1947 au cours d'expériences d'absorption RMN [93]. Nous allons présenter des résultats plus récents obtenus par Shore *et al* en 1987 qui en plus de mesurer un rétrécissement par le mouvement constatent un changement du profil spectral [12].

Illustration expérimentale

L'évolution du spectre RMN est représentée fig.3.13. Il a été obtenu à partir d'expériences d'échos de spin pour différentes températures [12]. Nous pouvons voir sur cette figure que le spectre est rétréci quand la température passe de 198K à 298K. Shore constate que la nature du spectre est modifiée, ce spectre est plutôt gaussien à basse température et acquiert un profil lorentzien à haute température. Cet effet est surprenant, puisque d'un premier abord on peut penser qu'une élévation de la température favorise le couplage entre le système étudié et l'environnement. Le fait d'augmenter l'agitation thermique devrait alors réduire le temps de cohérence du système étudié. Or les spectres deviennent plus étroits, c'est le contraire.

L'agitation thermique est pourtant bien la cause de ce rétrécissement.

En chauffant, le temps caractérisant l'agitation thermique est réduit et les fluctuations sont de plus en plus rapides. Au vu des résultats exposés dans la section précédente, il est alors possible de comprendre ce rétrécissement. En utilisant la terminologie introduite par Anderson, le système passe d'une situation *fluctuations lentes* ($\Sigma\tau_c \gg 1$) à une situation *fluctuations rapides* ($\Sigma\tau_c \ll 1$), le spectre

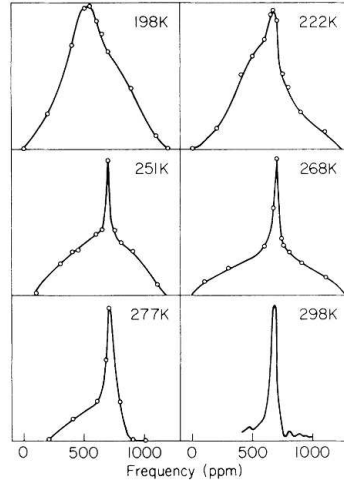


FIG. 3.13 – Evolution du profil de RMN en fonction de la température. Le profil est globalement gaussien à basse température (198K) et évolue vers un profil lorentzien étroit à température ambiante (298K) [12].

est plus étroit et devient lorentzien. Ainsi c'est la valeur de $\Sigma\tau_c$ qui permet de conclure si le système est en régime de rétrécissement par le mouvement. Ce critère provient de l'analyse de l'expression de la fonction de relaxation écrite en 3.64. Mais il est possible d'expliquer qualitativement le rôle de $\Sigma\tau_c$ qui peut être vu comme le déphasage moyen accumulé entre deux changements d'état de l'environnement. Nous allons détailler son rôle.

Rôle du déphasage

Si τ_c est le temps de corrélation des fluctuations, Σ l'écart type de ces fluctuations, la phase accumulée par l'oscillateur vaut $\Sigma\tau_c$ d'après l'équation 3.5 page 64. Pour qu'une modulation de fréquence apparaisse dans le spectre d'émission d'un objet, il faut au moins que le système ait accompli un cycle optique à la même fréquence. Sinon la fréquence n'est pas définie. Il est nécessaire qu'entre chaque changement de l'environnement électrostatique, le déphasage dû à la perturbation soit supérieur à 2π pour que la fréquence d'évolution du système soit changée de manière effective. Ainsi, la valeur du déphasage accumulé entre deux changement de $\delta\omega(t)$ permet de savoir si les fréquences instantanées vues par le dipôle apparaîtront dans le spectre.

Sur la figure 3.14 est représentée l'évolution de la phase $\Delta\psi(t) = \int_0^t d\nu\delta\omega(\nu)$, argument de l'exponentielle dans la fonction de relaxation $\Phi(\tau)$ (voir Eq.3.5), pour les deux situations ($\Sigma\tau_c \gg 1$ et $\Sigma\tau_c \ll 1$). Chaque rupture de pente correspond à un changement de configuration de l'environnement.

- Dans le cas $\Sigma\tau_c \gg 1$ (premier graphique), la variation de $\Delta\psi$ entre deux

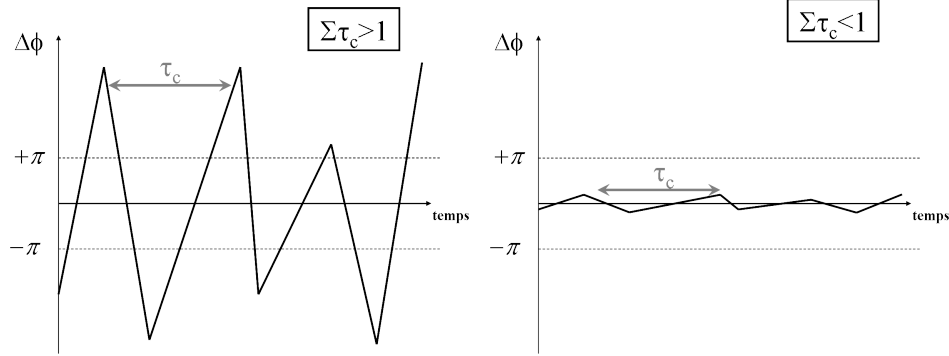


FIG. 3.14 – Evolution de $\Delta\psi(t) = \int_0^t d\nu \delta\omega(\nu)$ pour les deux situations $\Sigma\tau_c > 1$ et $\Sigma\tau_c < 1$.

changements de pente est globalement supérieure à 2π . Les fluctuations de fréquence seront bien effectives.

- Dans le cas $\Sigma\tau_c \ll 1$ (premier graphique), la variation de $\Delta\psi$ entre deux changements de pente est globalement très inférieure à 2π . Les évolutions de phase ne sont pas assez importantes pour qu'une autre fréquence que ω_0 apparaisse dans le spectre. Ainsi le spectre sera moyenné par rapport à la distribution des fréquences instantanées, il possédera une largeur à mi-hauteur réduite par rapport à celle du régime de "fluctuations lentes".

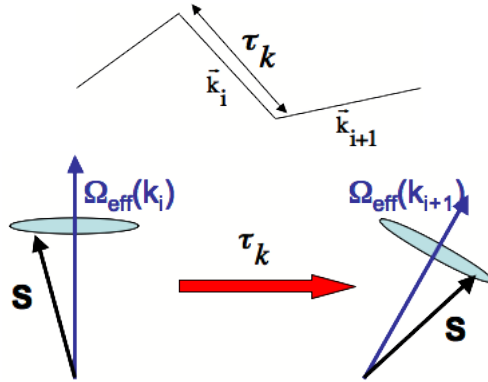


FIG. 3.15 – Evolution de la précession du spin selon $\Omega(\vec{k})$ entre deux chocs consécutifs décrits par les vecteurs d'ondes \vec{k}_i et \vec{k}_{i+1} .

Une manifestation de ce phénomène est le gel de la relaxation du spin dans les semiconducteurs non centrosymétriques, décrit par D'yakonov et Perel [39]. Du fait du couplage spin-orbite dans les matériaux non centraux symétriques, l'énergie de la bande de conduction dépend de l'état de spin :

$$E_{\vec{k}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} + \hbar \vec{\Omega}(\vec{k}) \cdot \vec{S} \quad (3.71)$$

Le premier terme est l'énergie cinétique de la quasi-particule électron de conduction. Le second terme peut être vu comme l'énergie du spin dans un champ magnétique effectif. Le spin précesse autour du champ magnétique effectif, colinéaire à \vec{k} , à la fréquence $\Omega(\vec{k})$. Du fait des collisions électroniques, caractérisées par un temps moyen τ_k entre deux chocs, l'orientation de \vec{k} change de manière aléatoire. Sur la figure 3.15, nous avons schématisé sur le graphique supérieur l'évolution de l'électron entre deux chocs et sur le graphique inférieur l'effet des chocs sur la précession du spin. Chaque choc engendre un changement aléatoire de la direction du vecteur $\vec{\Omega}(\vec{k})$ qui est l'axe de précession du spin. Ainsi D'yakonov et Perel montrent que dans ce processus le temps de relaxation du spin est proportionnel à la fréquence $\langle \Omega^2(\vec{k}) \rangle / \tau_k$. Ainsi la relaxation sera d'autant plus ralentie que les collisions seront fréquentes.

Nous venons de développer le calcul de Kubo qui nous permet d'obtenir l'expression de la fonction de relaxation pour un processus de bruit gaussien (appelé aussi bruit normal) caractérisé uniquement par son écart-type Σ et son temps de corrélation τ_c . Nous avons vu que les fluctuations pouvaient induire différents régimes sur le spectre rayonné. En fonction de la dynamique des fluctuations le spectre peut présenter un profil gaussien, régime de fluctuations lentes, ou un profil lorentzien, régime de rétrécissement par le mouvement.

3.3.3 Conclusion

Ainsi ce chapitre a permis de définir le phénomène de diffusion spectrale et de montrer la diversité de ses manifestations. Le modélisation des fluctuations de l'environnement par des systèmes à deux niveaux nous a permis d'utiliser le bruit télégraphique à deux valeurs comme base du calcul du bruit affectant un objet unique. Ce modèle est utilisable directement, il permet alors de comprendre et de modéliser le spectre d'émission d'un objet en interaction avec un dipôle unique. Si nous augmentons le nombre de TLS, nous pouvons également modéliser un bruit qui reste discret mais qui peut être applicable dans le cas où un nombre fini de pièges influencent l'objet, on parle alors de bruit pré-gaussien. Nous contrôlons alors parfaitement la modélisation car les fluctuations sont intégrables directement dans les équations d'évolution du moment dipolaire. Nous calculons alors aisément le spectre d'émission. Quand N tend vers l'infini, le bruit pré-gaussien tend vers un processus de Orstein-Uhlenbeck, utilisé par Kubo-Anderson pour comprendre les spectres RMN.

A partir du calcul de la fonction de relaxation de l'oscillateur, il apparaît différents régimes de fluctuations de fréquence : le régime des fluctuations lentes où le spectre émis correspond à la distribution statistique des énergies du dipôle et le régime de fluctuations rapides où les déphasages engendrés entre chaque fluctuation sont trop faibles pour changer la fréquence.

Ainsi nous venons de voir qu'il peut y avoir rétrécissement par le mouvement si

le produit $\Sigma\tau_c$ diminue du fait d'une diminution de τ_c provoquée par l'agitation thermique. Or il est tout à fait possible d'imaginer au regard des graphiques de la figure 3.14 qu'un effet similaire peut être produit en diminuant l'écart type Σ des fluctuations. Cette situation n'apparaît pas en RMN, mais nous allons montrer dans le dernier chapitre de ce manuscrit qu'elle est bien présente au niveau des boîtes quantiques.

Chapitre 4

Résultats expérimentaux

Nous avons vu précédemment que l'élargissement homogène de la raie à 0 phonon des boîtes quantiques InAs/GaAs ne pouvait être expliqué en considérant seulement un couplage direct aux phonons. Il semble que la diffusion spectrale engendrée par les fluctuations de l'environnement électrostatique de la boîte quantique, doive intervenir dans la décohérence de ses niveaux. Mis en évidence dans d'autres boîtes quantiques épitaxiées ou colloïdales, ce phénomène pourrait expliquer l'élargissement à basse température du spectre d'émission des boîtes quantiques d'InAs/GaAs, comme le suggèrent les travaux de Kammerer *et al* [5].

Ayant décrit le modèle théorique qui permet de calculer l'impact de la diffusion spectrale sur la réponse optique de la boîte quantique, nous allons, dans ce dernier chapitre, exposer l'étude expérimentale de ce phénomène. Ces résultats permettent de comprendre le rôle essentiel que joue la diffusion spectrale dans l'élargissement de la raie à 0 phonon.

Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'évolution du profil de raie d'émission d'une boîte quantique avec la température et la puissance d'excitation. Il apparaît alors que le spectre de photoluminescence de la boîte quantique peut présenter un changement de profil : lorentzien à basse température ou basse puissance d'excitation, il devient gaussien lorsqu'on augmente l'un ou l'autre de ces deux paramètres. Ce résultat est une manifestation d'un changement de régime de diffusion spectrale (voir Chap. 3). En utilisant le modèle de Kubo-Anderson, nous montrons que la boîte est, à basse température ou à basse puissance d'excitation, dans un régime de rétrécissement par le mouvement. En généralisant ce résultat à d'autres boîtes étudiées expérimentalement, nous parvenons à reproduire quantitativement l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon.

Après avoir identifié la source de diffusion spectrale affectant la boîte quantique (présence de défauts pouvant piéger des charges), nous nous proposons d'essayer de modifier la dynamique de cette diffusion spectrale à l'aide d'un champ électrique. Aussi, dans une dernière partie portant sur la réduction de la décohérence, nous détaillons l'étude expérimentale de boîtes quantiques soumises

à un champ électrique transverse. Ce champ modifie par effet tunnel la dynamique des porteurs autour de la boîte quantique. Il permet ainsi de contrôler la dynamique de fluctuation.

4.1 Transition lorentzien-gaussien du profil de la raie à 0 phonon

Cette section porte sur l'étude de l'évolution du profil de raie d'une boîte quantique appartenant à une méso de côté $1\ \mu m$ de l'échantillon "méso sur or". Nous constatons qu'une élévation de la température ou de la puissance d'excitation provoque un changement du profil du spectre de luminescence de la boîte quantique ; la boîte considérée sera appelée boîte LG dans la suite de ce manuscrit.

L'excitation optique de cette boîte est réalisée à l'aide du laser continu He-Ne à $1.95\ eV$, les paires électron-trou sont alors créées dans le GaAs. L'intensité du signal de luminescence de cette boîte est très importante, puisqu'à la saturation de l'émission de la raie excitonique nous pouvons détecter un signal de 22 000 coups par seconde, l'émission moyenne d'une boîte quantique étant plutôt autour de 5000 coups par seconde. Cette intensité nous a permis d'augmenter le rapport signal sur bruit et d'enregistrer des interférogrammes avec un contraste présentant une dynamique sur plus d'un ordre de grandeur.

4.1.1 Etude en Puissance

Résultats expérimentaux

Nous étudions l'évolution du profil du spectre d'émission de la boîte LG en fixant la température à $10\ K$ et en faisant varier la puissance d'excitation. Les résultats de cette étude sont représentés sur la figure 4.1 où sont reportés les contrastes des interférences obtenus pour des puissances d'excitation variant de $0.018\ kW.cm^{-2}$ à $2.88\ kW.cm^{-2}$. On notera aux faibles retards ($< 3\ ps$) la présence d'une composante parasite que nous discuterons en détail par la suite.

- Nous pouvons voir sur la figure 4.1(a) obtenue à faible puissance ($0.18\ kW.cm^{-2}$) que pour des retards supérieurs à $3\ ps$, la décroissance est purement exponentielle. Le contraste décroît selon un temps caractéristique $T \sim 30\ ps$. D'après le tableau 2.4 du chapitre 2, nous pouvons conclure que le profil de raie à 0 phonon est lorentzien avec une largeur à mi-hauteur de $45\ \mu eV$.
- Sur la figure 4.1(c), qui correspond à une forte puissance d'excitation ($2.88\ kW.cm^{-2}$), la décroissance devient gaussienne (pour des retards supérieurs à $3\ ps$). Son évolution peut être décrite par un terme de la forme $e^{\frac{-\tau^2}{4T^2}}$ avec $T \sim 8\ ps$. En se référant au tableau 2.4, il apparaît donc que le profil de raie est gaussien avec une largeur à mi-hauteur de $150\ \mu eV$.

- La figure 4.1(b) représente le contraste à une puissance intermédiaire (0.72 kW.cm^{-2}), la décroissance n'est ni gaussienne, ni lorentzienne, nous ne pouvons pas évaluer la valeur de la largeur de raie associée à partir des cas limites vus ci-dessus. Néanmoins, nous pouvons anticiper une largeur comprise entre 45 et $150 \text{ } \mu\text{eV}$ étant donné l'échelle temporelle de décroissance intermédiaire entre celle de la figure (a) et celle de la figure (c).

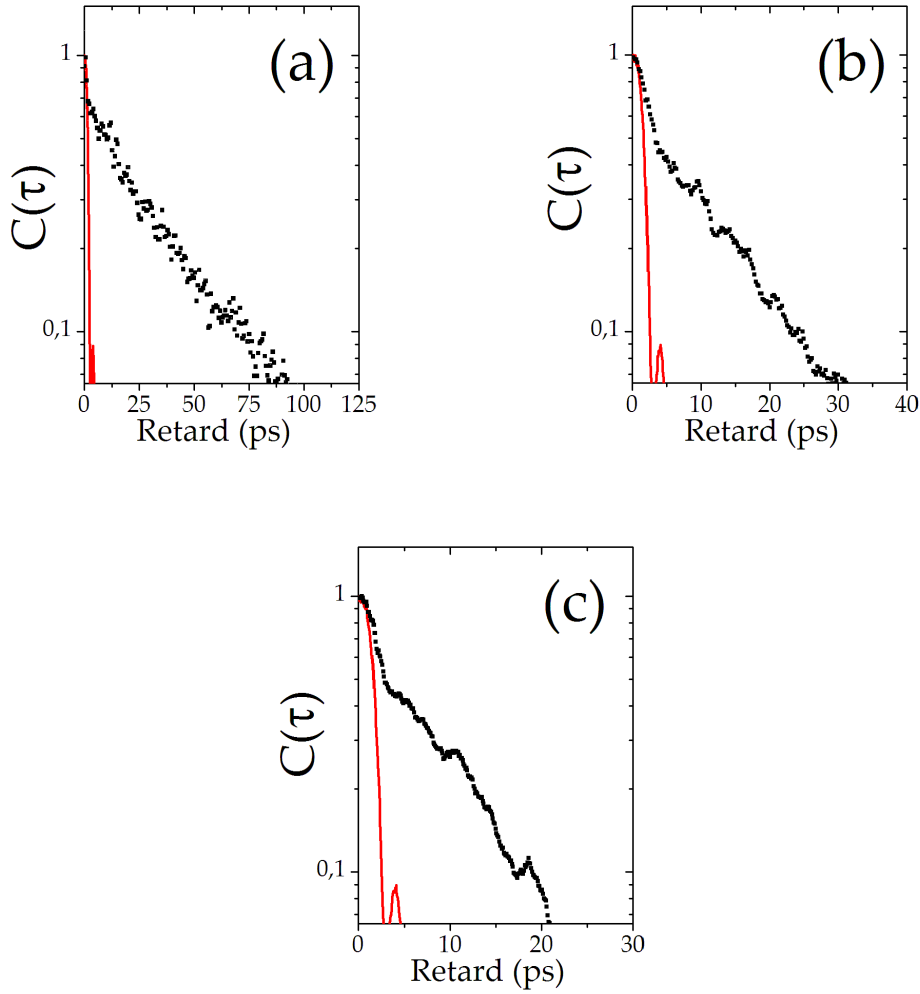


FIG. 4.1 – Evolution du profil de raie de la boîte LG en fonction de la puissance d'excitation pour une température $T=10 \text{ K}$. La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre. (a) $P=0.18 \text{ kW.cm}^{-2}$, (b) $P=0.72 \text{ kW.cm}^{-2}$ et (c) $P=2.88 \text{ kW.cm}^{-2}$. On notera le changement d'échelle de l'axe horizontal pour les figure (b) et (c).

Nous présentons par ailleurs l'évolution en puissance de la position spectrale de la raie excitonique de la boîte LG sur la figure 4.2. Les spectres ont été obtenus avec

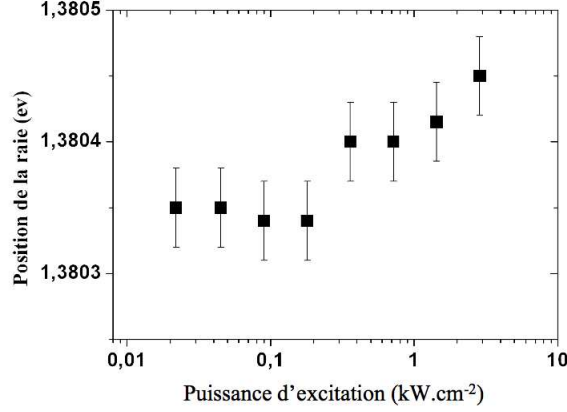


FIG. 4.2 – Evolution de la position spectrale de la raie LG en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K.

la barette CCD (détection multicanale). Nous constatons que l'énergie d'émission ne change pas jusqu'à 0.175 kW.cm^{-2} , à notre précision expérimentale près. Pour cette puissance, la raie subit un décalage spectral de l'ordre de $100 \mu\text{eV}$.

Dans la section suivante, nous montrons comment le modèle de Kubo-Anderson de la diffusion spectrale parvient à reproduire ces résultats.

Modélisation

En partant de la théorie de Kubo-Anderson développée dans le troisième chapitre, nous présentons un modèle de diffusion spectrale fondé sur les fluctuations de l'environnement électrostatique de la boîte. Dans un premier temps nous montrons que le contraste de la boîte LG peut être modélisé par un contraste dit "de Kubo" (voir chapitre 3). Nous décrirons dans une section ultérieure le modèle microscopique que nous avons développé pour comprendre les effets de la diffusion spectrale sur les spectres d'émission des boîtes quantiques InAs/GaAs.

Contraste de Kubo

Nous utilisons le contraste de Kubo comme modèle d'ajustement des résultats expérimentaux. Les paramètres d'ajustement sont donc l'écart-type Σ des fluctuations gaussiennes de l'énergie de recombinaison et le temps de corrélation τ_c (Eq.?? p.??) :

$$C(\tau) = \exp \left(-\Sigma^2 \tau_c^2 \left(\exp \left(-\frac{|\tau|}{\tau_c} \right) + \frac{|\tau|}{\tau_c} - 1 \right) \right) \quad (4.1)$$

Protocole d'ajustement

Nous remarquons sur la figure 4.1, pour des retards inférieurs à 3 ps, la présence

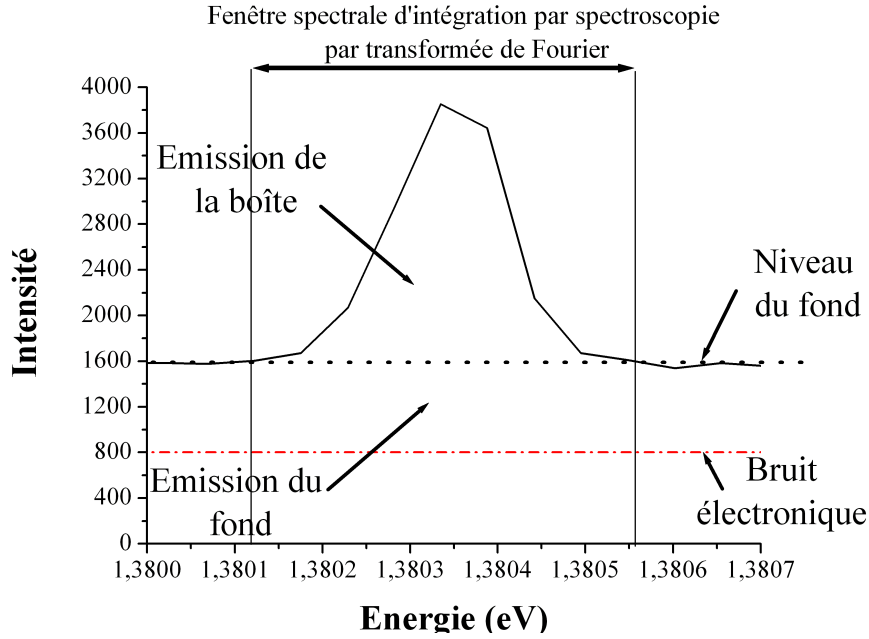


FIG. 4.3 – Evaluation des intensités du fond de luminescence et du signal de PL de la boîte quantique à partir d'un spectre obtenu avec la barette CCD pour une puissance de 0.72 kW.cm^{-2} et une température de 10 K.

d'une composante rapide dans la décroissance du contraste (carrés). Or sur cette même figure, nous avons représenté le contraste $C_{LB}(\tau)$ (pointillés) obtenu en éclairant le spectromètre avec une lumière blanche. Ce contraste correspond à la transformée de Fourier de la réponse spectrale du système de détection. Nous constatons que la décroissance rapide observée dans le contraste expérimental correspond exactement à celle de $C_{LB}(\tau)$. Elle semble donc provenir du fond d'émission présent au voisinage de la raie. Ce fond est aisément quantifiable à partir d'un spectre obtenu avec la barette CCD, nous allons décrire le protocole utilisé.

Sur la figure 4.3 nous avons représenté le spectre obtenu avec la barette CCD pour une puissance de 0.72 kW.cm^{-2} . La fenêtre spectrale de la détection monocanale, limitée par la taille de la photodiode, est représentée sur cette même figure. C'est le fond de luminescence contenu dans cette fenêtre qui produit la composante rapide dans l'évolution du contraste enregistré $C_{enr}(\tau)$. Si nous tenons compte de ce fond, $C_{enr}(\tau)$ peut s'écrire :

$$C_{enr}(\tau) = \alpha C_{LB}(\tau) + \mu C_{QD}(\tau) \text{ avec } \alpha + \mu = 1 \quad (4.2)$$

où $C_{QD}(\tau)$ est le contraste associé au spectre de luminescence de la boîte quantique et $C_{LB}(\tau)$ celui correspondant au fond de luminescence. α et μ sont les poids relatifs du signal de fond et du signal de boîte. Plus précisément, le rapport α/μ est proportionnel au rapport des intensités intégrées sur la fenêtre spectrale de

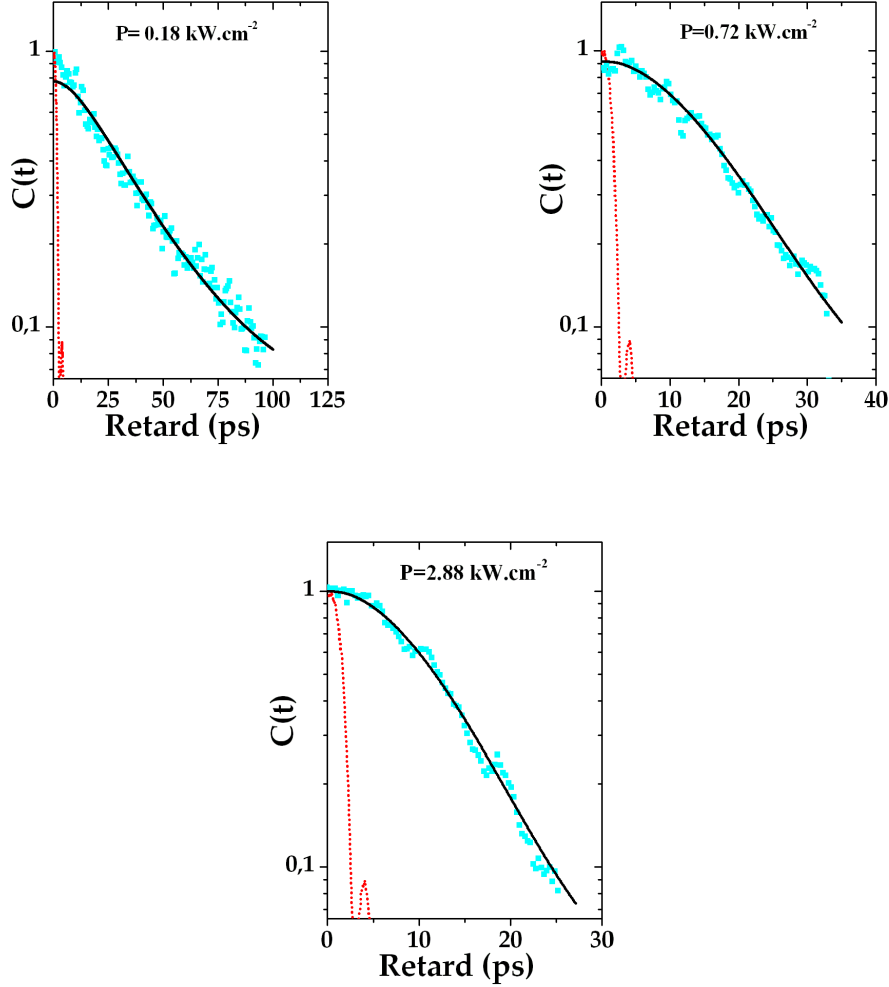


FIG. 4.4 – Ajustement théorique pour la transition en puissance : (a) $P=0.18 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 0.6$; (b) $P=0.72 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 1.05$; (c) $P=2.88 \text{ kW.cm}^{-2}$, $\Sigma\tau_c = 1.35$.

spectroscopie par transformée de Fourier, et calculées à partir du spectre CCD. Nous allons montrer comment déterminer ce rapport.

Sur la figure 4.3, nous avons tracé le niveau de bruit électronique qui est indépendant de l'éclairement de la barette CCD mais uniquement dépendant du temps de pose. Pour le spectre présenté sur la figure, ce fond vaut 800 coups. Les spectres intégrés du fond et de la boîte quantique doivent être calculés en soustrayant ce fond électronique. La ligne supérieure horizontale représente le niveau de photoluminescence du fond. Le spectre intégré du fond est donc proportionnel à l'aire \mathcal{A} définie par le rectangle apparaissant dans la figure, \mathcal{A} vaut 0.36 u.a.

Le spectre intégré de l'émission de la boîte quantique est un peu plus difficile

à obtenir :

- Il faut, dans un premier temps, calculer la surface \mathcal{B} sous la courbe de photoluminescence, pour la figure 4.3, $\mathcal{B} = 1.12$ u.a.
- Il est nécessaire ensuite de retirer la contribution du fond de luminescence et celle du bruit électronique à l'aire \mathcal{B} . L'aire associée à ces contributions, appelée \mathcal{C} vaut 0.720 u.a, avec un niveau de fond égal à 1600 coups.
- Le spectre intégré de la photoluminescence de la boîte quantique est alors proportionnel à la surface $\mathcal{D} = \mathcal{B} - \mathcal{C}$, dans notre cas $\mathcal{D} = 0.40$ u.a.

Nous pouvons à présent calculer le rapport α/μ , qui est égal à $\mathcal{A}/\mathcal{D} = 0.9$ pour le spectre représenté sur la figure 4.3. Comme $\alpha + \mu = 1$, nous déterminons $\alpha : 0.47$. Après soustraction de $\alpha C_{LB}(\tau)$ à $C_{enr}(\tau)$, nous extrayons la contribution de la raie à 0 phonon, qui est représentée sur la figure 4.4 après normalisation par μ .

Pour comparer le contraste modélisé et le contraste expérimental, il faut tenir compte d'un autre point qui est que le spectre enregistré $S_{enr}(\omega)$ est le produit de deux termes :

$$S_{enr}(\omega) = I(\omega) \times R(\omega) \quad (4.3)$$

où $I(\omega)$ est le spectre d'émission de la boîte quantique et $R(\omega)$ est la fonction de réponse du système de spectroscopie par transformée de Fourier dont l'extension est représentée schématiquement sur la figure 4.4. $R(\omega)$ caractérise l'intégration spectrale du signal étudié dans une expérience de spectroscopie par transformée de Fourier. D'après la relation 4.3, le contraste théorique $C_{th}(\tau)$ doit s'écrire :

$$C_{th}(\tau) = |TF(I(\omega) R(\omega))| = |TF(I(\omega)) \otimes TF(R(\omega))| \quad (4.4)$$

Expérimentalement, il apparaît un bruit $B(\tau)$ dans le contraste dû aux fluctuations de lecture du compteur de photons. Le contraste enregistré $C_{th}(\tau)$ vaut théoriquement dans ce cas :

$$C_{th}(\tau) = |[TF(I(\omega)) \otimes TF(R(\omega))] + B(\tau)| \quad (4.5)$$

On peut alors vérifier que ce contraste $C_{th}(\tau)$ est sensiblement égal à l'expression $C_{enr}(\tau)$:

$$C_{enr}(\tau) \simeq |TF(I(\omega))| \otimes |TF(R(\omega)) + B(\tau)| \quad (4.6)$$

On reconnaît alors l'expression théorique du contraste associé à la boîte quantique ($|TF(I(\omega))|$) et du contraste obtenu en lumière blanche ($|TF(R(\omega)) + B(\tau)|$). L'expression 4.6 se simplifie alors :

$$C_{enr}(\tau) \simeq C(\tau) \otimes C_{LB}(\tau) \quad (4.7)$$

où $C(\tau)$ est le contraste associé au signal émis par la boîte quantique et $C_{LB}(\tau)$ le contraste enregistré avec une lumière blanche.

Pour ajuster les résultats expérimentaux, nous prenons la convolution du contraste de Kubo et de $C_{LB}(\tau)$, donnée par l'équation 4.7. Cette dernière étape ne change pas radicalement la forme du contraste mais est essentielle pour reproduire les résultats expérimentaux lorsque le contraste est proche du bruit ($C(\tau) \leq 10^{-1}$).

Résultat de l'ajustement

Il n'est pas possible d'ajuster l'évolution du profil en faisant changer le temps de corrélation τ_c avec Σ fixé. Par contre, en conservant τ_c constant et en faisant varier l'amplitude des fluctuations Σ , il est possible de reproduire l'évolution du contraste.

Après avoir retiré la contribution du fond au contraste expérimental, nous obtenons les courbes présentées sur la figure 4.4 (carré). Nous pouvons alors les comparer à notre modèle (trait plein). L'accord entre les contrastes expérimentaux et le contraste de Kubo est très satisfaisant. Pour un temps de corrélation fixe, compris entre 7 ps et 13 ps, nous parvenons à reproduire l'évolution du contraste en faisant varier uniquement $\Sigma\tau_c$ qui lui varie d'un facteur 3.

L'ajustement est optimum pour un temps de corrélation de 10 ps et une évolution de $\Sigma\tau_c$ résumée dans la figure 4.5. Le changement de profil du spectre

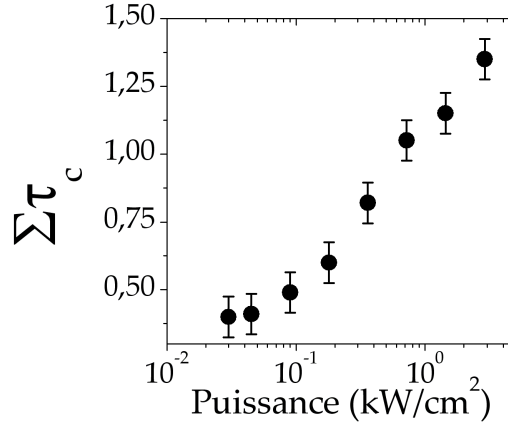


FIG. 4.5 – Evolution du produit $\Sigma\tau_c$ avec la puissance d'excitation pour $T=10$ K.

est quantifié par les variations de $\Sigma\tau_c$. A basse puissance d'excitation, le profil est lorentzien et le produit $\Sigma\tau_c$ vaut 0,6 pour $0,18 \text{ kW.cm}^{-2}$. Pour une puissance intermédiaire de $0,72 \text{ kW.cm}^{-2}$, le profil devient progressivement gaussien, nous obtenons un $\Sigma\tau_c$ proche de 1 (1,05). Pour les puissances les plus élevées, le profil est complètement gaussien, le produit $\Sigma\tau_c$ vaut par exemple 1,35 pour une puissance de $2,88 \text{ kW.cm}^{-2}$. Pour les basses puissances d'excitation ($< 0,5 \text{ kW.cm}^{-1}$), le produit $\Sigma\tau_c$ étant inférieur à 1, nous pouvons donc conclure que la boîte quantique est dans un régime de rétrécissement par le mouvement. Elle quitte ce régime quand on élève la puissance d'excitation. Le profil de raie s'élargit du fait

d'une augmentation de $\Sigma\tau_c$ induisant une modification du profil spectral.

Les largeurs à mi-hauteur correspondantes sont calculées à partir de la transformée de Fourier des contrastes théoriques et leur évolution est représentée sur la figure 4.6.

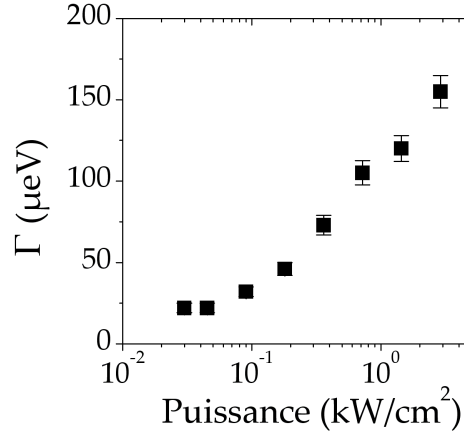


FIG. 4.6 – Evolution avec la puissance d'excitation de la largeur à mi-hauteur de la boîte LG, pour une température de 10 K.

En conclusion, nous parvenons à modéliser l'évolution avec la puissance des contrastes expérimentaux à l'aide du modèle de Kubo-Anderson de diffusion spectrale. L'augmentation de $\Sigma\tau_c$ montre que la diffusion spectrale passe d'un régime de "fluctuations rapides" à un régime de "fluctuations lentes" (voir Chap.3). Comme toute augmentation de la puissance de pompage crée plus de charges à hautes énergies, l'effet d'une élévation de puissance sur les fluctuations de charges autour de la boîte doit donc être analogue à celui d'une augmentation de l'agitation thermique (de la température). Or dans la phénoménologie RMN, l'élévation de température induit un passage d'un régime "lent" à un régime "rapide", c'est la phénoménologie contraire à celle des boîtes quantiques. Cette différence provient de la nature même des fluctuations affectant la boîte quantique. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement. Nous allons voir dans la section suivante comment la température affecte la diffusion spectrale de la boîte quantique, en particulier si cette dernière évolue selon une phénoménologie analogue à celle observée en fonction de la puissance.

4.1.2 Evolution en température

Résultats expérimentaux

Nous présentons dans la figure 4.7, l'évolution du contraste brut avec la température (10 K, 35 K et 45 K) pour une puissance fixée à 0.88 kW.cm^{-2} . L'analyse directe des résultats est plus difficile que dans les expériences en fonction de la puissance, en raison du fond de luminescence plus intense. Si un profil

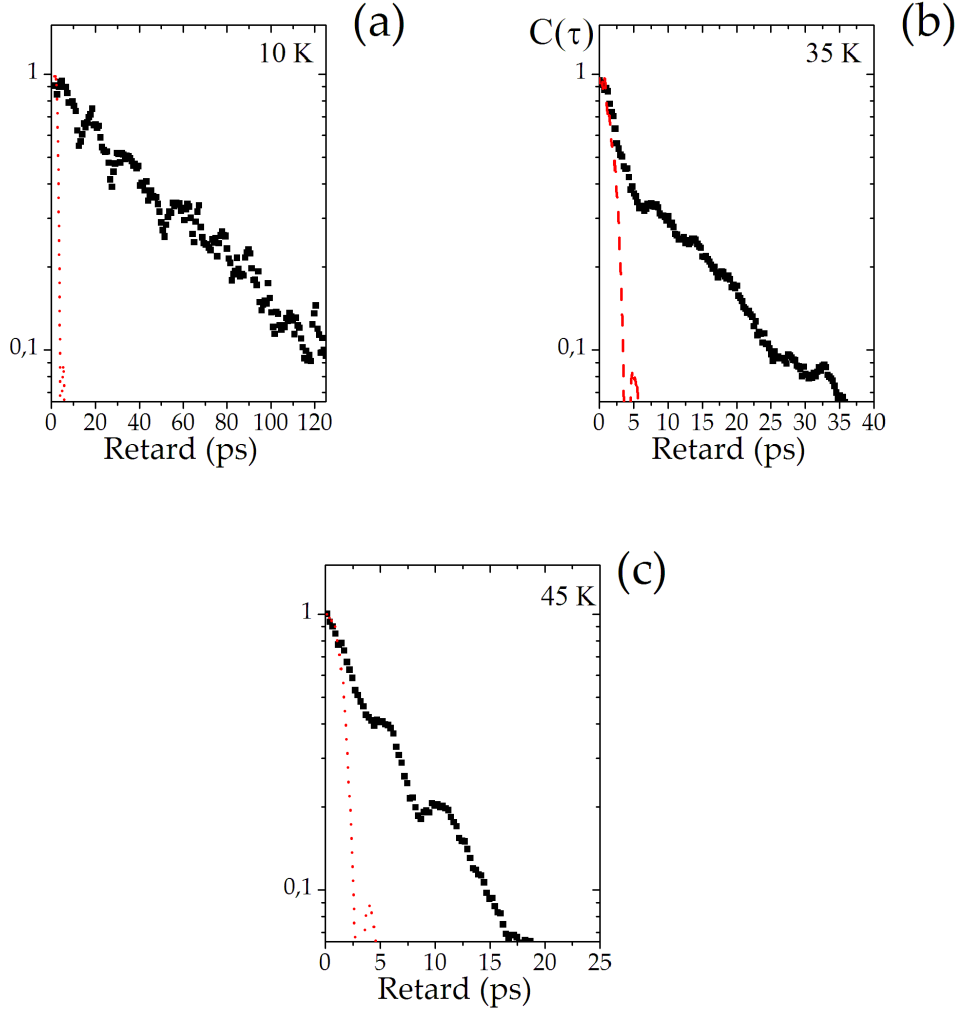


FIG. 4.7 – Evolution du profil de raie de la boîte LG (carrés) pour 3 températures : fig(a) 10 K, fig(b) 35 K et fig(c) 45 K pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2} . La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre.

mixte est à peu près identifiable à 35 K, il n'en est pas de même à 45 K où l'observation de la décroissance gaussienne du contraste nécessite absolument la procédure de soustraction décrite plus haut. Ce constat n'est pas surprenant sachant que d'une part, l'émission de la boîte diminue avec la température et que d'autre part, le poids des ailes de phonons acoustiques augmente (voir Chap.1). Il faut donc utiliser le même protocole que celui décrit dans l'étude en puissance pour retirer le fond des contrastes bruts.

Modélisation de Kubo

Une fois la contribution du fond retirée, nous traçons l'évolution en température des contrastes corrigés sur la figure 4.8. Les résultats de la modélisation du contraste par un contraste de Kubo sont également représentés sur cette figure en trait plein. Le contraste théorique est à nouveau la convolution du contraste de Kubo et de la fonction de réponse $C_{LB}(\tau)$. L'accord entre le contraste corrigé et le contraste théorique est très satisfaisant.

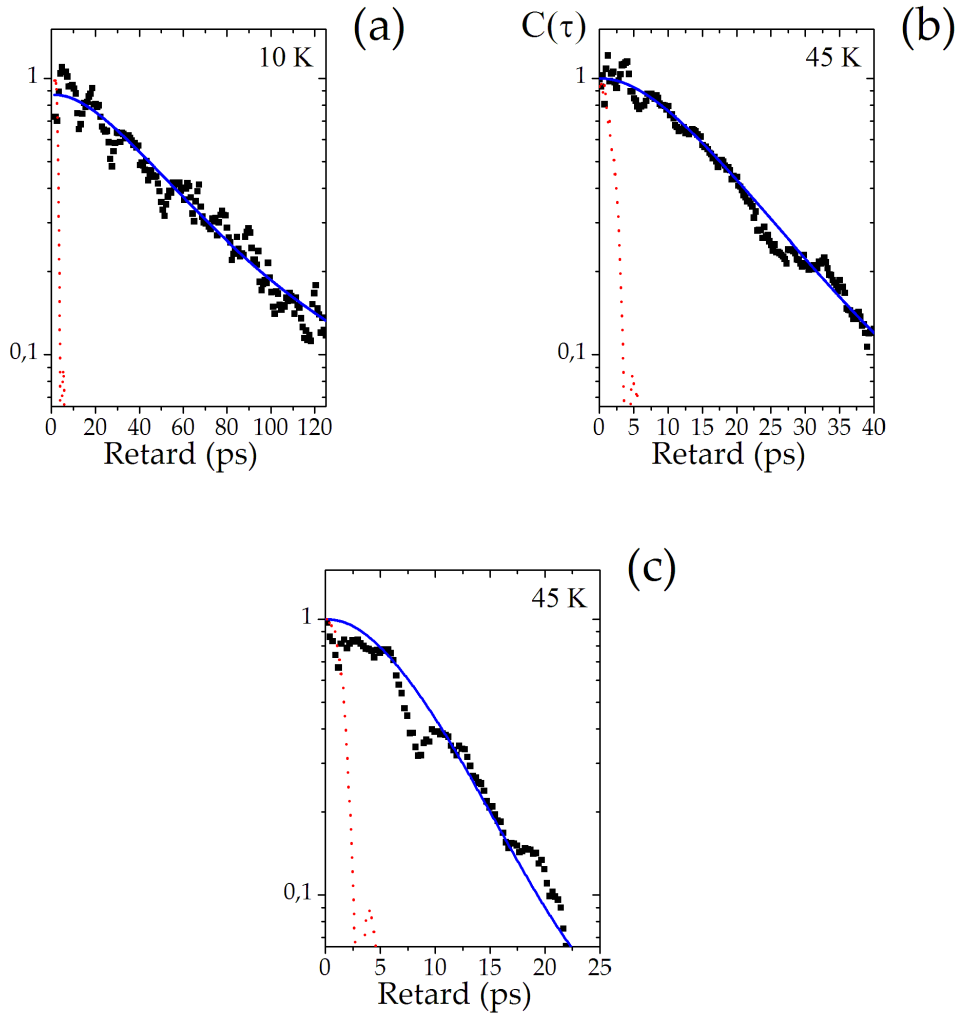


FIG. 4.8 – Evolution en température du contraste corrigé (carrés) et théorique (ligne pleine). La ligne en pointillés représente la fonction de réponse du spectromètre. (a) 10 K, $\Sigma\tau_c = 0.48$; (b) 35 K, $\Sigma\tau_c = 0.91$; et (c) 45 K, $\Sigma\tau_c = 1.38$.

Ainsi, en s'affranchissant du fond, nous pouvons voir sur la figure 4.8 que

l'évolution en température du profil de raie est quasiment identique à celle en puissance. A basse température le profil est lorentzien (décroissance exponentielle du contraste). Quand la température augmente, le profil n'est plus clairement lorentzien et devient gaussien à haute température. L'évolution du profil de raie avec la température semble analogue à l'étude en puissance.

L'évolution du produit $\Sigma\tau_c$, déterminée par l'ajustement des contrastes, est représentée sur la figure 4.9. Nous trouvons que pour une température de 10 K, $\Sigma\tau_c = 0.48$, ce qui est en accord avec le profil lorentzien identifié dans la figure 4.8(a). Pour une température intermédiaire de 35 K, $\Sigma\tau_c = 0.91$, la valeur du produit est proche de 1. Ceci explique que la décroissance du contraste associé ne soit ni clairement gaussienne, ni clairement lorentzienne. Enfin pour une température de 45 K, le produit $\Sigma\tau_c$ vaut 1.38 (profil gaussien).

La mesure des largeurs associées est représentée sur la figure 4.10. A 10 K, cette largeur vaut $30 \mu\text{eV}$, à 35 K, elle vaut $85 \mu\text{eV}$ et à 45 K elle vaut $170 \mu\text{eV}$. Ainsi le changement de profil s'accompagne bien d'un élargissement de la raie d'émission de la boîte qui sort de son régime de rétrécissement par le mouvement.

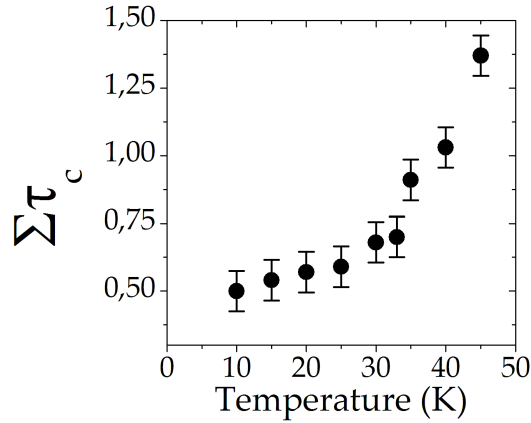


FIG. 4.9 – Evolution de rapport $\Sigma\tau_c$ avec la température pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2} .

Cette phénoménologie est contraire à celle observée en RMN où le rétrécissement par le mouvement est activé en température. Cette différence provient du fait que les fluctuations présentes en RMN et dans les boîtes quantiques ont des mécanismes très différents. Nous allons maintenant décrire le modèle microscopique de fluctuation affectant les boîtes quantiques.

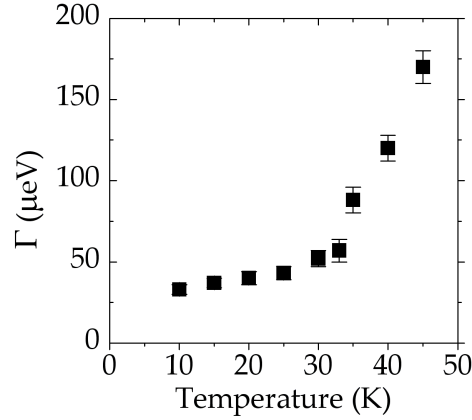


FIG. 4.10 – Evolution de la largeur de raie de la boîte LG en fonction de la température pour une puissance de $0,088 \text{ kW.cm}^{-2}$.

4.1.3 Modèle microscopique des fluctuations de l'environnement

Description

Nous allons à présent fournir un modèle microscopique pour la diffusion spectrale des boîtes quantiques InAs/GaAs permettant d'expliquer l'évolution du profil de raie avec la puissance d'excitation et la température décrite dans la section précédente. En particulier, la modélisation doit être capable d'expliquer le rétrécissement par le mouvement non conventionnel observé [37]. La diffusion spectrale étant entièrement déterminée par les valeurs de l'écart-type Σ et du temps de corrélation τ_c , ce sont ces paramètres, que le modèle microscopique doit fournir.

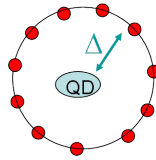


FIG. 4.11 – Représentation schématique de la modélisation d'une boîte quantique en interaction avec N pièges identiques. Chaque piège engendre un décalage Stark Δ de la raie.

Nous supposons que la boîte quantique est entourée de N défauts pouvant piéger une charge libre (fig 4.11). Ces N pièges sont alors N systèmes à deux niveaux (N TLS) tels que ceux décrits dans le chapitre 3. Par convention l'état plein d'un piège, produisant un décalage Stark Δ de la raie excitonique, correspond au niveau fondamental du TLS. L'état vide, sans effet sur l'énergie de transition de

la boîte, sera l'état excité du TLS. Si on compare ce modèle à celui développé dans le chapitre 3 pour un seul TLS (.3.2.2 p.67), cela revient à considérer $|\Delta| = 2|\alpha|$. Nous considérons N TLS identiques, décorrélés avec N suffisamment important (typiquement $N > 10$ d'après [11]) pour que le modèle de fluctuation soit gaussien (voir Chap. 3).

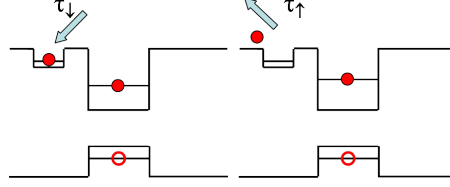


FIG. 4.12 – A gauche : Processus de piégeage caractérisé par le temps moyen τ_{\downarrow} . A droite : processus de dépiégeage caractérisé par le temps moyen τ_{\uparrow} .

Chaque piège est caractérisé par un temps moyen de piégeage τ_{\downarrow} et un temps moyen de dépiégeage τ_{\uparrow} . Les deux processus sont représentés dans la figure 4.12. A présent, nous devons calculer le temps de corrélation τ_c et l'écart type Σ pour relier ce modèle microscopique à notre modèle d'ajustement de Kubo-Anderson.

Les probabilités que le TLS soit dans l'état fondamental P_0 ou dans l'état excité P_1 évoluent selon les équations :

$$\frac{dP_0}{dt} = -\frac{1}{\tau_{\uparrow}}P_1 + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}P_0 \quad (4.8)$$

$$\frac{dP_1}{dt} = +\frac{1}{\tau_{\uparrow}}P_1 - \frac{1}{\tau_{\downarrow}}P_0 \quad (4.9)$$

A partir de ces équations, nous pouvons obtenir les valeurs P_0^0 et P_1^0 à l'équilibre qui sont les taux moyens d'occupation de l'état fondamental et de l'état excité :

$$P_0^0 = \frac{\frac{1}{\tau_{\uparrow}}}{\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}} , \quad P_1^0 = \frac{\frac{1}{\tau_{\downarrow}}}{\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}}} \quad (4.10)$$

Nous avons ainsi accès à la valeur moyenne du peuplement du piège et non à ses fluctuations qui sont caractérisées par le temps de corrélation τ_c et par l'amplitude de fluctuations Σ .

Il est possible de montrer théoriquement [87] ou par des simulations de Monte-Carlo que le temps de corrélation τ_c du système est donné par l'expression :

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{1}{\tau_{\downarrow}} + \frac{1}{\tau_{\uparrow}} \quad (4.11)$$

Nous allons décrire brièvement les simulations de Monte-Carlo qui nous permettent de calculer l'évolution de la fonction d'autocorrélation du décalage de la raie, et donc de calculer le temps de corrélation caractérisant l'amplitude des fluctuations produites par les N pièges (voir Eq.3.21 p.67).

- Pour chaque TLS, nous devons calculer une évolution possible : partant d'un état initial plein, un générateur de nombres aléatoires à loi exponentielle nous permet de calculer l'instant du premier changement d'état, ensuite celui du deuxième et ainsi de suite. Nous obtenons de cette manière une description de l'évolution du décalage Stark engendré par un TLS en fonction du temps.
- Nous sommions les décalages engendrés par ces N TLS. Nous obtenons une évolution possible du décalage de la raie en fonction du temps.
- Nous réitérons la modélisation un certain nombre de fois (1000). En moyennant toutes les réalisations possibles, nous connaissons alors la loi d'évolution de la fonction d'autocorrélation du décalage spectral de la raie.
- Le temps de corrélation est alors le temps caractéristique de la décroissance exponentielle de la fonction d'autocorrélation (voir Eq.3.21 p.67).

La comparaison entre l'expression théorique 4.11 (traits pleins) et le résultat des simulations (carrés) est représentée sur la figure 4.13. L'accord entre simulations et théorie est très satisfaisant. Dans la limite où les deux temps (piégeage et dépiégeage) sont très différents, le temps de corrélation est alors égal au temps le plus petit. Ainsi sur la figure nous pouvons voir que quand τ_{\downarrow} tend vers 0, τ_c tend vers τ_{\downarrow} .

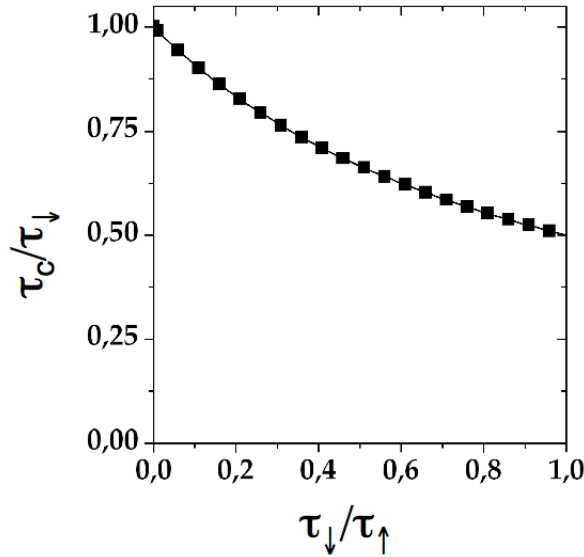


FIG. 4.13 – Evolution du temps de corrélation τ_c , normalisé à τ_{\downarrow} , en fonction du rapport $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow}$ obtenu par simulation de Monte-Carlo (carrés) et à partir de l'expression 4.11 (ligne).

Il faut maintenant calculer Σ , l'écart type des fluctuations que ressent la boîte quantique entourée de N pièges. En introduisant y l'asymétrie entre le temps

d'échappement τ_{\uparrow} et le temps de piégeage τ_{\downarrow} définie par :

$$y = \frac{\tau_{\uparrow}}{\tau_{\downarrow}} \quad (4.12)$$

La probabilité P_0^0 que le piège soit occupé vaut d'après l'équation 4.10 :

$$P_0^0 = \frac{y}{1+y} \quad (4.13)$$

Chaque charge χ piégée dans un défaut engendre un potentiel électrostatique Ψ_{χ} qui induit un décalage Stark de l'énergie de la paire électron-trou de la boîte quantique. Dans l'hypothèse d'un régime de champ électrique faible, ce décalage Stark engendré par la présence de la charge χ est de la forme [100] :

$$\delta_{stark} = -e \langle S_e S_h | \Psi_{\chi}(\vec{r}_e) \Psi_{\chi}(\vec{r}_h) | S_e S_h \rangle \quad (4.14)$$

où $S_e S_h$ est la paire électron-trou de la boîte quantique, $\Psi_{\chi}(\vec{r}_e)$ le potentiel créé par la charge χ au niveau de l'électron de la paire électron-trou et $\Psi_{\chi}(\vec{r}_h)$ le potentiel engendré par la charge χ au niveau du trou de la paire électron-trou. Ce décalage est composé de deux termes, un terme de couplage monopôle-dipôle, et un terme de couplage monopôle-quadrupôle [100].

Si nous considérons une distribution de pièges ayant pour centre de symétrie la boîte quantique, les contributions dipôlares des décalages Stark engendrées par chaque piège s'annulent mais les composantes quadrupôlares s'additionnent [100]. Nommons Δ le décalage Stark quadrupolaire créé par une charge sur l'énergie de la paire électron-trou de la boîte quantique. La variation de l'énergie de transition $\Delta E(t)$ peut être décrite à partir de l'état des N pièges :

$$\Delta E(t) = \Delta \sum_{i=1}^N \epsilon_i(t) \quad (4.15)$$

où $\epsilon_i(t)$ est l'état du i^{eme} TLS à l'instant t avec $\epsilon_i(t) = 0$ si l'état du TLS est excité (piège vide) et $\epsilon_i(t) = 1$ si l'état du TLS est fondamental.

Connaissant la probabilité P_0^0 que le piège soit plein d'après l'équation 4.13, ce modèle microscopique permet dans un premier temps de calculer le décalage moyen $\langle \Delta E \rangle$ de la raie :

$$\langle \Delta E \rangle = \Delta \sum_{i=1}^N \langle \epsilon_i(t) \rangle \quad (4.16)$$

$$= \Delta N P_0^0 \quad (4.17)$$

$$= \Delta N \left(\frac{y}{1+y} \right) \quad (4.18)$$

Nous pouvons maintenant calculer la variance V, des fluctuations de l'énergie de transition de la boîte produites par les N TLS :

$$V = \langle \Delta E^2 \rangle - \langle \Delta E \rangle^2 \quad (4.19)$$

Le deuxième terme de l'équation 4.19 vaut :

$$\langle \Delta E \rangle^2 = \left[\Delta \sum_i \langle \epsilon_i \rangle \right]^2 = \Delta^2 N^2 \left(\frac{y}{1+y} \right)^2 \quad (4.20)$$

Le premier terme de l'équation 4.19 s'écrit alors :

$$\langle \Delta E^2 \rangle = \Delta^2 \left[\sum_i \langle \epsilon_i^2 \rangle + \sum_{i \neq j} \langle \epsilon_i \epsilon_j \rangle \right] \quad (4.21)$$

$$= \Delta^2 \left(N \frac{y}{1+y} + N(N-1) \left(\frac{y}{1+y} \right)^2 \right) \quad (4.22)$$

Nous obtenons finalement pour la variance :

$$V = \frac{\Delta^2 N y}{(1+y)^2} \quad (4.23)$$

Pour revenir aux notations du chapitre 3, nous définissons Σ l'écart-type des fluctuations de pulsation et pour notre modèle de fluctuation microscopique :

$$\Sigma = \frac{\sqrt{V}}{\hbar} = \frac{\Delta \sqrt{N}}{\hbar \left(\sqrt{y} + \frac{1}{\sqrt{y}} \right)} = \frac{\Delta \sqrt{N}}{\hbar \left(\sqrt{\frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}}} + \sqrt{\frac{\tau_{\uparrow}}{\tau_{\downarrow}}} \right)} \quad (4.24)$$

Son évolution est représentée en fonction de $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow}$ sur la figure 4.14, où nous comparons l'évolution théorique de Σ aux résultats obtenus par des simulations de Monte Carlo. Nous définissons $\Sigma_s = \Delta \sqrt{N} / (2\hbar)$, qui est la valeur maximale de Σ et qui correspond à la situation où le piégeage et le dépiégeage sont des processus symétriques. L'écart type Σ peut alors s'écrire :

$$\Sigma = \frac{2\Sigma_s}{\sqrt{\frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}}} + \sqrt{\frac{\tau_{\uparrow}}{\tau_{\downarrow}}}} \quad (4.25)$$

En résumé, la modélisation par des systèmes TLS permet de calculer l'écart-type Σ et le temps de corrélation τ_c . Ces deux paramètres dépendent des temps de piégeage et de dépiégeage, du nombre de pièges N et du décalage Stark Δ . Ce sont les temps τ_{\uparrow} et τ_{\downarrow} qui évoluent avec la température ou la puissance. Nous devons déterminer les processus agissant sur ces deux temps, pour comprendre l'évolution de Σ et τ_c mesurée expérimentalement.

Evolution des temps de capture et d'échappement

Nous devons fournir un modèle d'évolution pour les temps τ_{\uparrow} et τ_{\downarrow} . En prenant en compte des processus de piégeage ou dépiégeage assistés par phonons

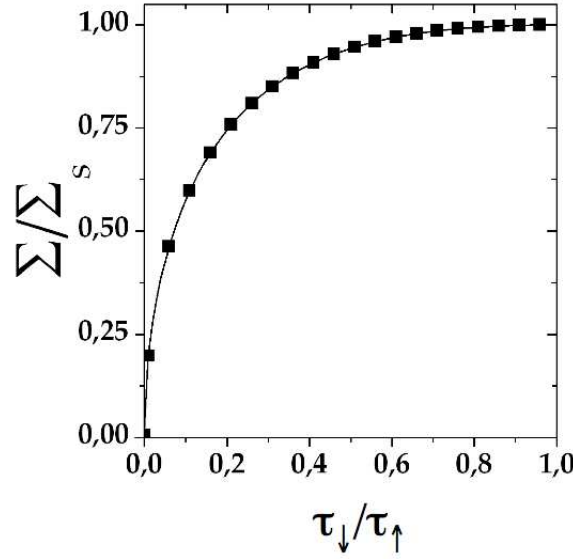


FIG. 4.14 – Evolution de l'écart-type Σ en fonction de l'asymétrie $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow} = y$ obtenue à partir des simulations de Monte Carlo (carrés) et à partir de l'expression 4.24 (ligne pleine).

(acoustiques ou optiques) ou par effet Auger, nous allons décrire l'évolution des temps par les expressions :

$$\frac{1}{\tau_{\downarrow}} = \frac{1}{\tau_1} (1 + n_1(T)) + \frac{1}{\tau_2} (1 + n_2(T)) + \frac{1}{\tau_3} f(P) \quad (4.26)$$

$$\frac{1}{\tau_{\uparrow}} = \frac{1}{\tau_1} n_1(T) + \frac{1}{\tau_2} n_2(T) + \frac{1}{\tau_3} f'(P) \quad (4.27)$$

où $\frac{1}{\tau_1} (1 + n_1(T))$ rend compte de la capture d'un porteur par émission d'un phonon acoustique et $\frac{1}{\tau_1} n_1(T)$ correspond à l'échappement du porteur hors du piège par absorption d'un phonon acoustique.

$\frac{1}{\tau_2} (1 + n_2(T))$ est associé au processus de capture assisté par émission d'un phonon optique et $\frac{1}{\tau_2} n_2(T)$ traduit l'échappement assisté par absorption d'un phonon optique. $n_1(T)$ et $n_2(T)$ sont les facteurs d'occupation de Bose-Einstein des modes de phonons acoustiques et optiques :

$$n_i = \frac{1}{\exp(E_i/kT) - 1} \quad (4.28)$$

où E_i est l'énergie d'un phonon. Pour les phonons optiques, cette énergie est pratiquement indépendante du vecteur d'onde \vec{q} , mais pour les phonons acoustiques, cette énergie varie avec le vecteur d'onde. La modélisation précédente suppose l'existence d'une valeur moyenne pour ces énergies correspondant aux phonons

acoustiques se couplant le plus facilement avec le piège. Les temps caractérisant le couplage aux phonons optiques ou aux phonons acoustiques peuvent être calculés à partir de la règle d'or de Fermi comme il a été décrit dans le premier chapitre.

Le troisième terme de l'équation 4.27 est associé au processus de dépiégeage assisté par effet Auger. Nous avons également ajouter une contribution de type Auger dans le processus de piégeage (voir équation 4.26). Un processus Auger est un processus de diffusion élastique entre états à plusieurs porteurs via l'interaction Coulombienne. Il peut être par exemple un processus faisant intervenir un électron chaud délocalisé et l'électron piégé dans le défaut : l'électron piégé sort du défaut et l'électron chaud relaxe vers des états de plus basse énergie. Dans ce cas, le taux d'activation de ce processus est proportionnel à la densité des états photocréés délocalisés. Si cette densité est gouvernée par une recombinaison radiative interbande bimoléculaire, elle est proportionnelle à \sqrt{P} [101]. Nous ignorons la nature exacte du processus Auger dominant dans notre cas et nous utilisons une loi de puissance générale qui permet de rendre compte des travaux de Bockelmann *et al* [102]. Le taux d'activation Auger peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{1}{\tau_{auger}} = \frac{1}{\tau_3} \frac{P^\beta}{P^\beta + P_0^\beta} \quad (4.29)$$

où β est l'exposant de la loi de puissance caractérisant la nature exacte du processus Auger. P_0 est la puissance seuil de l'effet Auger. Pour le processus Auger décrit plus haut $\beta = \frac{1}{2}$ et si la puissance de saturation est très faible devant la puissance seuil, l'expression 4.29 devient :

$$\frac{1}{\tau_{auger}} = \frac{1}{\tau_3} \sqrt{\frac{P}{P_0}} \quad (4.30)$$

Nous voulons que la modélisation des processus d'échappement et de piégeage décrits par les équations 4.26 et 4.27 permette de reproduire l'évolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur et du produit $\Sigma\tau_c$ en fonction de la température et de la puissance d'excitation. Par ajustement des paramètres E_1 , E_2 , τ_1 , τ_2 , τ_3 et P_0 décrivant les variations de τ_\downarrow et de τ_\uparrow , il est possible de calculer les valeurs théoriques de Σ et τ_c à partir des expressions 4.24 et 4.11. Le calcul de $\Sigma\tau_c$ est alors immédiat et nous utilisons les équations 3.70 et 3.68 (page 78) pour calculer l'évolution de la largeur à mi hauteur avec la température et avec la puissance d'excitation. Il faut noter que les équations 3.70 et 3.68 ne sont valables que si le profil est clairement lorentzien ou clairement gaussien. L'analyse des profils mixtes nécessite un traitement supplémentaire. Au voisinage du changement de profil ($\Sigma\tau_c \simeq 1$), on procède par interpolation entre la largeur gaussienne et la largeur lorentzienne pour calculer la largeur à mi-hauteur.

Les variations du produit $\Sigma\tau_c$ et de la largeur à mi-hauteur Γ avec la puissance sont respectivement représentées en trait plein sur la figure 4.15 et sur la figure 4.16. Pour l'étude avec la température, il s'agit de la figure 4.17 et de la figure

4.18. Les données expérimentales correspondent aux symboles, les traits pleins à la modélisation.

L'ajustement est très satisfaisant pour les valeurs suivantes des paramètres : $\hbar\Sigma_s = 400 \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$. Ainsi les évolutions, avec la puissance d'excitation ou la température, de la largeur de raie (Γ) et du profil (caractérisé par $\Sigma\tau_c$) peuvent être reproduites théoriquement en fixant ces 7 paramètres. Nous discutons à présent les valeurs de ces paramètres.

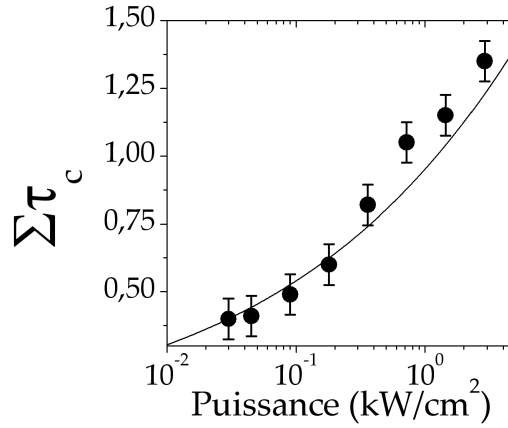


FIG. 4.15 – Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution du produit $\Sigma\tau_c$ en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$.

L'ajustement des résultats expérimentaux ne nécessite pas de prendre en compte le mécanisme de piégeage assisté par effet Auger. S'il est pris en compte, ce processus est un terme correctif (face aux termes associés aux phonons) qui décale faiblement (10 %) la valeur de Σ_s . Pour le processus d'échappement assisté par effet Auger, le temps d'activation $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, est calculé à $P = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$. Ce résultat est en accord avec les résultats des travaux présentés par O'Hara *et al* [101].

Nous allons maintenant commenter le couplage du défaut aux phonons. Le temps de couplage aux phonons acoustiques est beaucoup plus grand que le temps de couplage avec les phonons optiques. Si les défauts sont relativement profonds, l'énergie des phonons acoustiques n'est pas assez grande ($E_1 = 1 \text{ meV}$) pour permettre aux états localisés du défaut de diffuser efficacement vers les états délocalisés de la couche de mouillage (ou le contraire).

Pour les phonons optiques, comme l'énergie du phonon est beaucoup plus grande, le couplage est alors facilité. Le temps caractéristique vaut alors 10 ps .

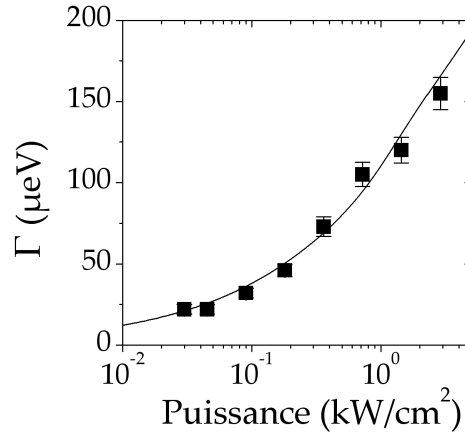


FIG. 4.16 – Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la puissance d'excitation pour une température de 10 K. Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$.

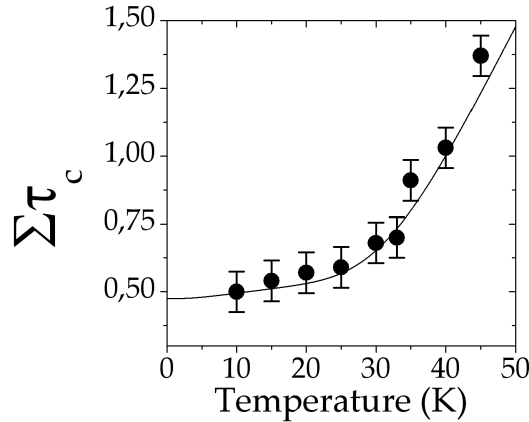


FIG. 4.17 – Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution du produit $\Sigma\tau_c$ en fonction de la température pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2} . Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$.

Nous pouvons remarquer que l'énergie caractéristique de ce processus est très faible (20 meV) devant l'énergie des phonons optiques dans GaAs (36 meV) ou dans InAs (32 meV). Cela peut être dû à l'intervention d'état polaronique comme pour les boîtes quantiques. Cependant la simplicité du traitement de l'interaction electron-phonon dans le cadre de notre modèle peut vraisemblablement expliquer la différence.

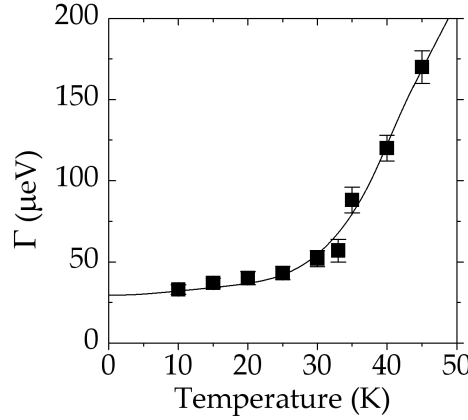


FIG. 4.18 – Résultats expérimentaux (symboles) et ajustement théorique (trait plein) pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la température pour une puissance d'excitation de 0.088 kW.cm^{-2} . Les paramètres d'ajustement sont $\hbar\Sigma_s = 400 \text{ } \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 35 \text{ ns}$, $\tau_2 = 10 \text{ ps}$, $\tau_3 = 1.3 \text{ ns}$, $P_0 = 25 \text{ kW.cm}^{-2}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 20 \text{ meV}$.

A la vue des valeurs numériques données plus haut, il apparaît que le piégeage assisté par émission d'un phonon optique est le processus majoritaire. Dans le terme de piégeage assisté par émission de phonon optique, le facteur de population $1 + n_2(T)$ évolue très peu entre 10 K et 50 K car $n_2(T) \ll 1$. De fait, le piégeage assisté par émission de phonon optique n'est quasiment pas activé en température. Il ne l'est pas du tout avec la puissance d'excitation. Par conséquent, le temps de piégeage $\tau_1 \simeq \tau_2 = 10 \text{ ps}$ est indépendant de la température et de la puissance d'excitation. Cette valeur est en accord avec les résultats de Lohner *et al* [103] qui montrent que la relaxation d'un trou de la bande de valence vers un niveau d'impureté de type *p* se fait avec émission de phonon optique selon un temps caractéristique de l'ordre de quelques dizaines de *ps*.

Pour le processus d'échappement, la situation est très différente. Les modes de phonons optiques ne sont pas assez peuplés pour que le processus d'échappement par absorption d'un phonon optique soit prédominant. Dans le régime de température étudié, c'est le mécanisme assisté par phonon acoustique qui détermine les variations du temps d'échappement τ_1 quand on augmente la température. En effet, l'énergie moyenne E_1 des phonons acoustiques (1 meV) est beaucoup plus faible que l'énergie E_2 des phonons optiques (20 meV). Ainsi, malgré un temps caractéristique beaucoup plus long que celui caractérisant le couplage aux phonons optiques, c'est le processus faisant intervenir les phonons acoustiques qui est activé lorsqu'il y a élévation de la température. Par contre à partir de 40 K, c'est le processus d'échappement par absorption de phonon optique qui provoque la forte augmentation de Σ .

Un rétrécissement par le mouvement inhabituel

Avec les valeurs des paramètres d'ajustement utilisées plus haut, nous constatons que nous sommes dans un régime où $\tau_{\downarrow} \ll \tau_{\uparrow}$. Le temps de corrélation est alors globalement égal à τ_{\downarrow} , ce qui explique le fait que τ_c n'évolue pas quand on change la température ou la puissance d'excitation. Comme $\tau_{\downarrow} \ll \tau_{\uparrow}$, nous sommes dans le cas où :

$$\Sigma \simeq \hbar \Sigma_s \sqrt{\frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}}} \quad (4.31)$$

ce qui correspond au comportement asymptotique de Σ aux faibles valeurs de $y = \frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}}$ (Fig. 4.14). Or τ_{\uparrow} diminue avec la température (par absorption de phonons acoustiques) ou avec la puissance d'excitation (par effet Auger). Ainsi d'après l'expression 4.31, toute augmentation de la puissance ou de la température provoque une augmentation de Σ , donc de $\Sigma \tau_c$ puisque $\tau_c \simeq \tau_{\downarrow} \simeq 10 \text{ ps}$. Nous pouvons conclure que dans le cas des boîtes quantiques, la transition entre les régimes de fluctuations rapides et lentes s'effectue par changement de l'amplitude Σ à temps de corrélation constant.

C'est la phénoménologie contraire à celle décrite en RMN dans le chapitre 3 où les spectres de RMN présentent une transition gaussien-lorentzien (par réduction de $\Sigma \tau_c$) quand la température du milieu augmente. En RMN, l'amplitude des fluctuations n'évolue pas avec la température, c'est le temps de corrélation qui change. Une augmentation de température provoque une diminution du temps de corrélation qui fait passer le système d'un régime de fluctuations lentes à un régime de fluctuations rapides.

Ainsi, notre description microscopique des sources de fluctuations nous permet d'interpréter quantitativement les évolutions de profil et de largeur de raie avec la température ou la puissance d'excitation. Nous allons analyser dans le paragraphe suivant le décalage spectral de la raie observé quand on augmente la puissance d'excitation (voir fig. 4.2).

Interprétation du décalage spectral observé

Le modèle microscopique de diffusion spectrale détaillé dans la section 4.1.3, page 95, donne une valeur théorique de ce décalage :

$$\langle \Delta E \rangle = \frac{N \Delta}{\frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}} + 1} = \sqrt{N} \frac{2 \hbar \Sigma_s}{\frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}} + 1} \quad (4.32)$$

D'après l'équation 4.32, connaissant l'évolution de τ_{\uparrow} en fonction de la puissance d'excitation, nous pouvons alors calculer l'évolution du décalage (voir section 4.1.3) avec le paramètre N qui reste à déterminer. Le résultat est montré sur la figure 4.19 où le décalage spectral mesuré (carrés) et le modèle théorique (ligne) sont représentés. Lorsque la puissance augmente, $y = \frac{\tau_{\downarrow}}{\tau_{\uparrow}}$ augmente, le nombre de pièges occupés diminue, ce qui décale la raie vers le bleu, car un piège occupé décale vers le rouge la transition optique de boîte quantique.

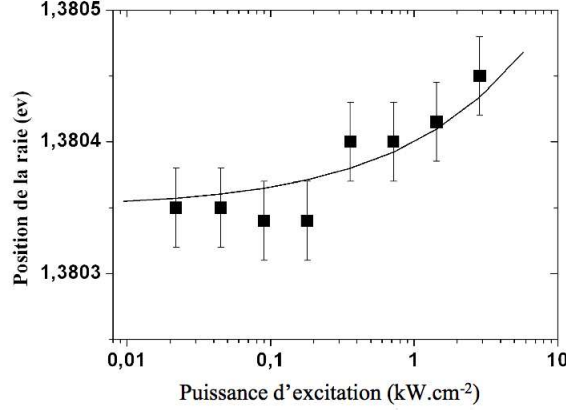


FIG. 4.19 – Evolution de la position spectrale de la boîte LG mesurée (carrés) et théorique (ligne).

Pour reproduire l'évolution du décalage, il faut que le nombre de pièges N vaille environ 100. Alors que l'étude du profil de raie donne accès uniquement à $\sqrt{N}\Delta$, l'évolution de la position centrale de la raie permet l'évaluation de Δ et N (voir Eq.4.32).

Nature des pièges

Avec $\hbar\Sigma_s = \Delta\sqrt{N}/2$, la détermination de $N \sim 100$ et de $\hbar\Sigma_s = 400\mu\text{eV}$ permet d'avoir une estimation du décalage Stark produit par un seul piège : $\Delta \sim 80\mu\text{eV}$. Cette valeur est à comparer à l'étude théorique réalisée par Aleksandar Jankovich au cours de sa thèse [100], portant sur l'effet de piégeage de charges sur les niveaux de boîtes quantiques. Si nous considérons une impureté dans la couche de mouillage pouvant piéger un électron, le piégeage de la charge génère un décalage Stark de la raie de $-80\mu\text{eV}$ si la distance séparant la boîte de l'impureté vaut $d \sim 10\text{ nm}$. Par contre, si le défaut considéré est un défaut d'interface au niveau de la couche de mouillage, il peut piéger des excitons. Pour que le décalage Stark vaille $80\mu\text{eV}$, il faut alors que la distance séparant la boîte quantique du défaut de la couche de mouillage soit de $d = 17\text{ nm}$. Ainsi, pour une distance fixe, une entité globalement neutre (l'exciton) induit des décalages Stark (de type quadripolaires) plus important que celui engendré par un électron, ceci peut provenir de la nature quadripolaire du couplage entre la paire électron-trou de la boîte et les charges piégées. Si nous calculons la densité de défaut correspondante, en considérant que les N défauts sont contenus dans un cercle de rayon d , nous trouvons $3 \cdot 10^{13}$ défauts par cm^2 , si ce sont des impuretés, et 10^{13} défauts par cm^2 si ce sont des défauts d'interface de la couche de mouillage.

Ces densités sont très importantes, surtout dans le cas de défauts d'interface de la couche de mouillage. Ces derniers ne sont pas ponctuels et ont typiquement

une densité identique à celle des boîtes (10^{10} cm^{-2} dans notre cas). Il semble donc plus probable que ces défauts soient du type impureté. Cependant une densité élevée pourrait être expliquée par une inhomogénéité de la répartition des défauts. En effet, on peut voir sur certaines images AFM une zone de déplétion autour de la boîte quantique du fait de la croissance de l'îlot. Cette zone de forte contrainte pourrait donc concentrer les défauts à l'origine de la diffusion spectrale des boîtes quantiques, ce qui localement augmenterait la densité vue par la boîte.

En conclusion, nous avons présenté une interprétation quantitative de nos données à partir d'un modèle basé sur la théorie de la diffusion spectrale de Kubo-Anderson complétée par une description microscopique des fluctuations dans le cas des boîtes quantiques. Un point essentiel est l'asymétrie des processus de piégeage et de dépiégeage qui conduit à une transition inhabituelle entre les régimes de fluctuations rapides et lentes lorsque la température ou la puissance d'excitation augmente. Si nous montrons une interprétation très satisfaisante pour cette boîte quantique dont le profil de raie change, qu'en est-il pour d'autres boîtes quantiques ?

4.2 Etude de l'élargissement sur d'autres boîtes quantiques

4.2.1 Elargissement en température et en puissance pour 4 autres boîtes quantiques

Nous avons étudié l'évolution avec la température et la puissance d'excitation de la largeur à mi-hauteur de la raie d'exciton fondamental pour 4 boîtes quantiques appartenant à une même méso. Nous utilisons toujours l'échantillon "méso sur or" dont la structure est détaillée dans le second chapitre. Les boîtes étudiées A, B, C et D sont toutes issues d'une même méso de côté $1 \mu\text{m}$ dans le but de s'affranchir d'un effet possible de la méso sur la décohérence de l'exciton [104].

Les paires électron-trou sont créées dans le GaAs à l'aide du laser continu He-Ne à 1.95 eV . Nous travaillons avec des puissances d'excitation comprises entre 0.022 kW.cm^{-2} et 5.88 kW.cm^{-2} , c'est à dire en dessous ou au niveau du seuil de saturation (0.8 kW.cm^{-2}) de ces boîtes quantiques. Les spectres sont obtenus par la technique de spectroscopie par transformée de Fourier décrite dans le second chapitre.

Les 4 boîtes présentent toujours une décroissance exponentielle du contraste de la figure d'interférence. Leurs spectres ont un profil lorentzien. D'après les résultats de la première section de ce chapitre, un profil lorentzien correspond à un régime de rétrécissement par le mouvement. Nous présentons dans la figure 4.20 l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon des boîtes A, B, C et D en fonction de la puissance d'excitation du laser et de la température de l'échantillon. Une première constatation s'impose : les comportements en

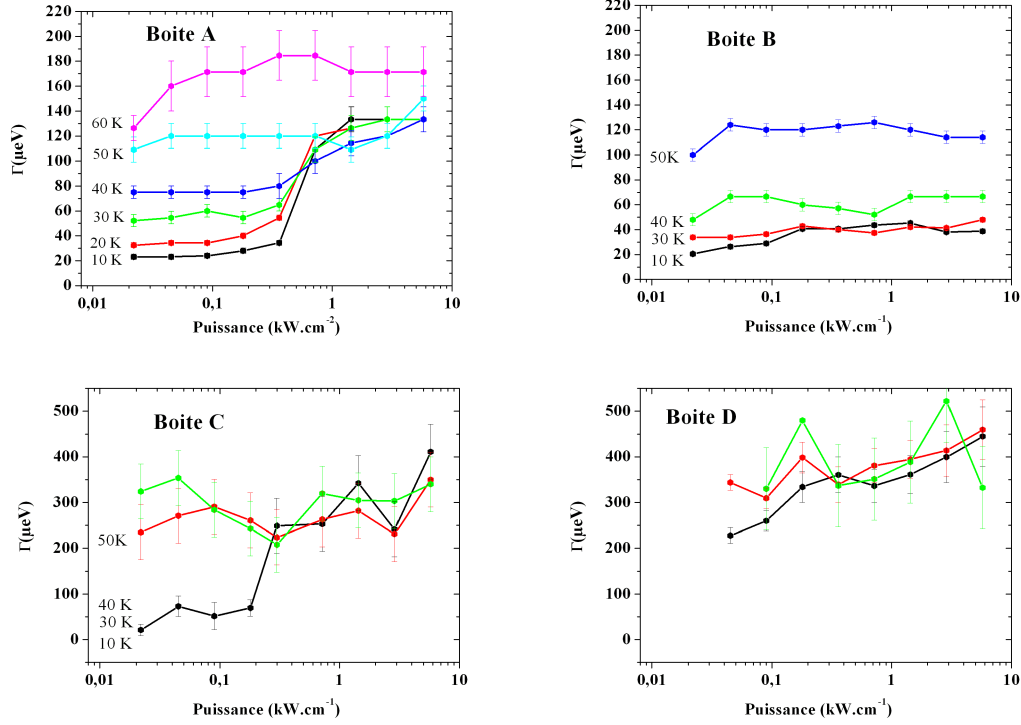


FIG. 4.20 – Evolution de la largeur à mi-hauteur Γ en fonction de la puissance d'excitation et en fonction de la température du milieu.

température et en puissance d'excitation sont tous différents d'une boîte à l'autre.

- la largeur mesurée à 10 K et à basse puissance est propre à chaque boîte quantique et elle varie de 20 μeV à 150 μeV .
- la boîte A présente une évolution importante en température et en puissance d'excitation alors que la boîte B est peu sensible au changement de puissance et que la boîte D est au contraire peu sensible à la température.

Ainsi, au sein d'une même mésa, la phénoménologie d'élargissement de la raie à 0 phonon est multiple. Nous allons à présent détailler l'évolution en fonction de la puissance d'excitation des 4 boîtes pour les températures 10 K et 50 K. Puis nous présenterons l'évolution en température.

Comportement en puissance à 10 K

Nous étudions l'évolution en puissance des largeurs de raie des 4 boîtes à 10 K.

- **La boîte quantique A** présente globalement une forte évolution en puissance. Jusqu'à 0.40 kW.cm^{-2} l'élargissement est relativement faible, la largeur de la raie d'émission de la boîte passe de 22 μeV à 32 μeV . Entre 0.35 et 1.4 kW.cm^{-2} , l'élargissement devient plus important. La largeur de raie

évolue alors de $34 \mu\text{eV}$ à $134 \mu\text{eV}$. Pour des puissances supérieures à 1.4 kW.cm^{-2} , la largeur de raie n'évolue pratiquement plus et semble atteindre une valeur de saturation Γ_s . Ainsi la largeur de raie présente une évolution à seuil qui sature à forte puissance.

- **La boîte quantique B** présente de faibles variations. La valeur de la largeur de la raie d'émission à basse puissance d'excitation est pratiquement identique à celle de la boîte A ($20 \mu\text{eV}$). Mais son évolution est beaucoup plus faible : il n'y a pas de seuil visible en puissance et la largeur maximale mesurée vaut $45 \mu\text{eV}$. Par contre, un effet de saturation est aussi visible à partir de 0.175 kW.cm^{-2} .
- **La boîte quantique C** présente un comportement analogue au comportement de la boîte A mais avec des variations beaucoup plus grandes, puisque la largeur de raie passe de $24 \mu\text{eV}$ à $300 \mu\text{eV}$. Les barres d'erreurs deviennent importantes car les largeurs mesurées sont comparables à la résolution donnée par la fenêtre du détecteur ($450 \mu\text{eV}$).
- **La boîte quantique D** présente un niveau de signal très bas et nous n'avons pas pu mesurer la largeur à mi-hauteur à 0.22 kW.cm^{-2} . Mais pour une puissance de 0.44 kW.cm^{-1} la largeur de raie, $200 \mu\text{eV}$, est déjà très grande. A puissance élevée nous avons une évolution plutôt monotone et la largeur de raie atteint des valeurs de l'ordre de $450 \mu\text{eV}$.

En résumé, les largeurs des trois premières boîtes (A, B et C) sont comparables à basse température et à basse puissance. Mais la valeur de la largeur à basse puissance ne permet pas de prévoir ces variations puisque nous observons des évolutions très différentes (voir figure 4.20). Chaque comportement est propre à chaque boîte. Mais à 50 K les élargissements en puissance des 4 boîtes sont très similaires.

Comportement en puissance à 50 K

Nous allons détailler l'élargissement en puissance à 50K.

- **La boîte A** ne présente plus du tout d'évolution en puissance à notre précision expérimentale près. A basse puissance la largeur de la raie est déjà à sa valeur de saturation ($120 \mu\text{eV}$), toute augmentation de la puissance d'excitation n'a plus aucun effet.
- **La boîte B** ne présente plus aucune évolution avec la puissance d'excitation (sauf pour le point à puissance minimale) contrairement à 10 K où il y avait un faible élargissement avec la puissance d'excitation. La largeur à mi hauteur est plus élevée ($100 \mu\text{eV}$) à 50 K qu'à 10K ($30 \mu\text{eV}$).
- **Les boîtes C et D** ne présentent plus d'évolution avec la puissance d'excitation (toujours à notre précision expérimentale près).

Les comportements des boîtes A et B qui sont radicalement différents à 10 K sont en revanche similaires à 50 K.

Evolution de la largeur à mi-hauteur avec la température

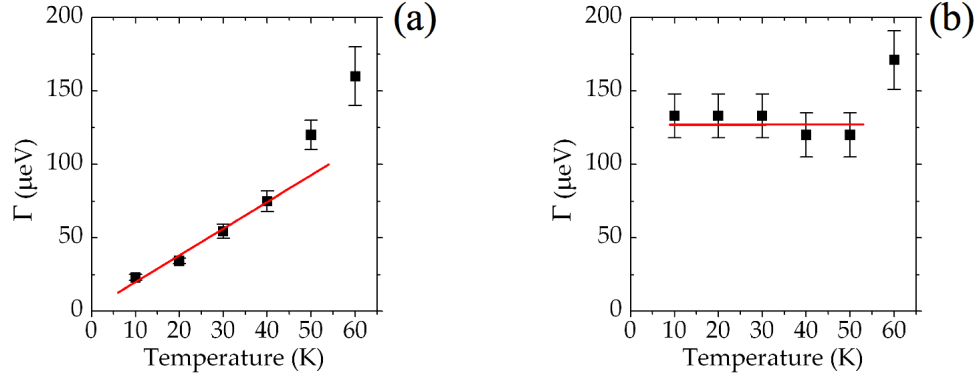


FIG. 4.21 – Elargissement en température de la raie à 0 phonon de la boîte A pour une puissance d’excitation de 0.045 kW.cm^{-2} (a) et 5.75 kW.cm^{-2} (b) (carrés) et ajustement linéaire permettant de calculer le coefficient α entre 10 K et 40K (trait plein).

Nous décrivons sur la figure 4.21 l’élargissement en température de la boîte A, pour deux puissances différentes, 0.045 kW.cm^{-2} et 5.75 kW.cm^{-2} . Sur cette figure apparaît également l’ajustement linéaire de ces élargissements calculé entre 10 K et 40K. Nous caractérisons cette évolution par la mesure du coefficient d’élargissement α défini dans le premier chapitre :

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \alpha T \quad (4.33)$$

Nous trouvons $\alpha = 1.5 \pm 0.3 \text{ } \mu\text{eV.K}^{-1}$ pour une puissance d’excitation de 0.045 kW.cm^{-2} et $\alpha = 0 \pm 0.3 \text{ } \mu\text{eV.K}^{-1}$ à 40 K pour une puissance d’excitation de 5.75 kW.cm^{-2}

La boîte B présente le même effet que la boîte A mais dans une moindre mesure. A basse puissance (0.045 kW.cm^{-2}) le taux d’élargissement moyen vaut $\alpha = 2 \pm 0.3 \text{ } \mu\text{eV.K}^{-1}$, tandis qu’à forte puissance (5.75 kW.cm^{-2}) le taux passe à $\alpha = 1.25 \text{ } \mu\text{eV.K}^{-1}$. L’effet de la puissance sur l’élargissement en température semble moins important pour la boîte B que pour la boîte A.

Ainsi pour ces deux boîtes, la puissance d’excitation du laser semble jouer un rôle sur le mécanisme d’élargissement en température de la raie à 0 phonon. Nous allons essayer d’interpréter quantitativement les résultats de la boîte A qui présentent les variations les plus importantes, ce qui permet d’utiliser notre modélisation avec plus de précision.

L'élargissement en température et en puissance d'excitation sature pour la même valeur Γ_s . Sous ce seuil de saturation, l'élargissement dépend de ces deux paramètres qui semblent jouer un rôle analogue. L'élargissement mesuré expérimentalement peut ainsi être décrit par l'expression :

$$\Gamma(T, P) = \Gamma_0(P) + \alpha(P)T \quad (4.34)$$

Cette description est valable dans le régime des basses températures ($T < 40$ K), puisque pour des températures supérieures à 40 K, le déphasage assisté par phonons optiques, via les polarons, devient important. Le premier terme traduit la dépendance de la largeur à mi-hauteur à 0 K en fonction de la puissance d'excitation. Le second terme est l'élargissement en température caractérisé par le taux d'élargissement $\alpha(P)$. Dans la section suivante, nous montrons comment l'élargissement de la raie à 0 phonon de la boîte A peut être expliqué par le traitement de Kubo-Anderson basé sur le modèle microscopique de fluctuations décrit précédemment.

4.2.2 Ajustements et interprétations

Modélisation pour les temps d'échappement

Nous souhaitons vérifier si le modèle microscopique décrit précédemment permet de reproduire les évolutions de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon de la boîte A. Nous considérons donc que les processus de piégeage et de dépiégeage sont toujours décrits par les équations introduites précédemment :

$$\frac{1}{\tau_{\downarrow}} = \frac{1}{\tau_1} (1 + n_1(T)) + \frac{1}{\tau_2} (1 + n_2(T)) \quad (4.35)$$

$$\frac{1}{\tau_{\uparrow}} = \frac{1}{\tau_1} n_1(T) + \frac{1}{\tau_2} n_2(T) + \frac{1}{\tau_3} \frac{P^\beta}{(P^\beta + P_0^\beta)} \quad (4.36)$$

Après avoir calculé l'évolution en température et en puissance des temps de dépiégeage et de piégeage à l'aide des équations ci-dessus pour un jeu de paramètres (τ_1 , τ_2 , E_1 , E_2 , β , τ_3 et P_0), nous pouvons alors en déduire l'évolution de la largeur à mi-hauteur en fonction de T et P et la comparer aux résultats expérimentaux. Nous n'avons pas inclus le terme de piégeage assisté par effet Auger car la modélisation proposée suffit pour ajuster nos résultats expérimentaux.

Ajustement des résultats expérimentaux

Nous allons tout d'abord tester notre modélisation sur l'évolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur à 20 K.

Dans un premier temps, nous supposons que le processus Auger est identique à celui utilisé pour ajuster la transition lorentzien-gaussien du profil de raie de la boîte LG. Les résultats de l'ajustement sont représentés sur la figure 4.23 en

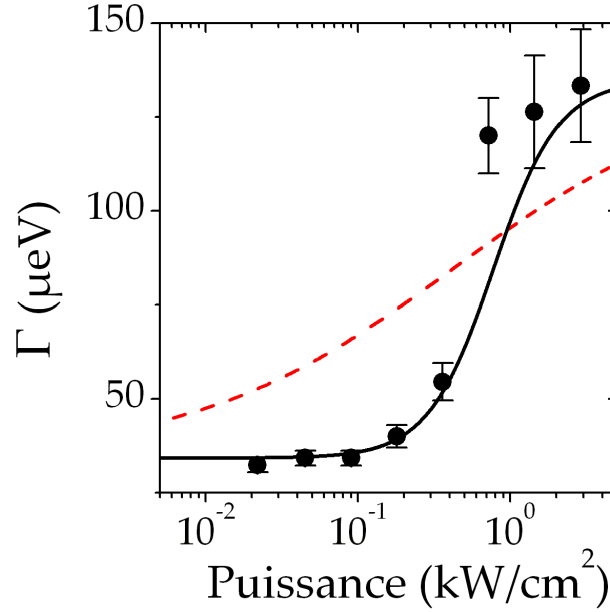


FIG. 4.22 – Evolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la puissance d'excitation à 20 K (ronds). Modélisation théorique en prenant $\beta = 0.5$ (tirets) et $\beta = 2$ (traits pleins).

pointillés. La modélisation n'est pas satisfaisante, car l'évolution en puissance n'est pas assez importante pour reproduire les résultats expérimentaux (ronds). Nous considérons alors une dépendance quadratique en P ($\beta=2$). Le résultat est représenté sur la figure en trait plein. L'accord est très satisfaisant et valide le choix de $\beta = 2$ pour le processus Auger. Cette loi de puissance est caractéristique d'un processus Auger qui fait intervenir deux excitons.

Le calcul de l'élargissement en puissance pour d'autres températures (10 K, 20 K, 30 K, 40 K et 50 K) nous permet alors de déterminer la dépendance en température des temps de piégeage et de dépiégeage. Les résultats de cette modélisation sont représentés sur la figure 4.23 (traits pleins) où l'on peut également voir les résultats expérimentaux (symboles). Chaque type de marqueur correspond à une température. Les paramètres d'ajustements sont $\hbar\Sigma_s = 150 \mu eV$, $\tau_1 = 200 ps$, $\tau_2 = 5 ps$, $\tau_3 = 35 ps$, $E_1 = 1 meV$ et $E_2 = 30 meV$, $\beta = 2$, $P_0 = 0,96 kW.cm^{-2}$.

L'ajustement est très satisfaisant pour 20 K, 30 K, et 40 K ; par ailleurs la saturation est bien reproduite. Notre modèle microscopique de fluctuations permet d'expliquer cette saturation de l'élargissement par une saturation de l'amplitude des fluctuations (visible sur la figure 4.14). Cependant, notre modélisation semble légèrement moins performante pour 10 K et 50 K. Néanmoins, le problème à 50 K peut se comprendre si on considère qu'à cette température, la boîte quantique commence à se coupler avec les phonons optiques. Pour l'ajustement à 10 K peut-

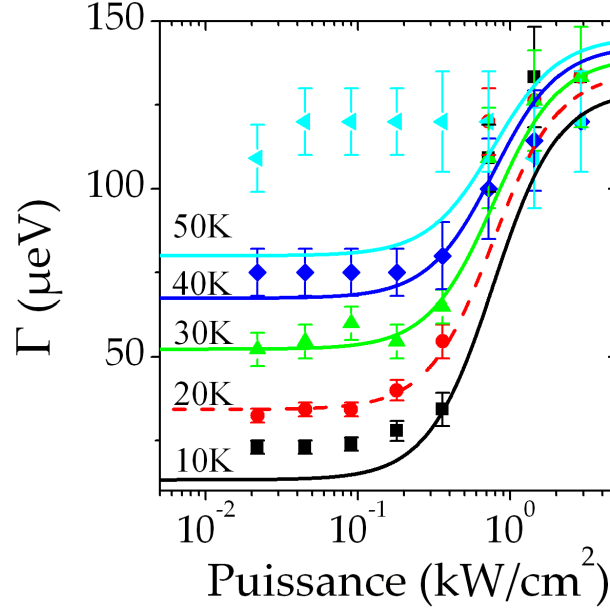


FIG. 4.23 – Résultats expérimentaux et théorique pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la température et de la puissance d'excitation. Les paramètres d'ajustements sont $\hbar\Sigma_s = 150 \mu\text{eV}$, $\tau_1 = 200 \text{ ps}$, $\tau_2 = 5 \text{ ps}$, $\tau_3 = 35 \text{ ps}$, $E_1 = 1 \text{ meV}$ et $E_2 = 30 \text{ meV}$, $\beta = 2$, $P_0 = 0.96 \text{ kW.cm}^{-2}$.

être faut-il tenir compte du couplage d'ordre 2 entre les niveaux de la boîte et les phonons acoustiques? Ces effets ont été décrits dans le premier chapitre. Nous allons commenter les paramètres d'ajustement obtenus.

Comme pour la boîte LG, la valeur du temps τ_2 , temps caractéristique de couplage aux phonons optiques, fixe la valeur de τ_c . Or ici, τ_c est uniquement majoré. En effet, en mesurant la largeur à mi-hauteur de la raie nous connaissons la valeur du produit $\Sigma^2\tau_c$. Comme la boîte est dans un régime de rétrécissement par le mouvement, Σ et τ_c vérifient l'inégalité $\Sigma\tau_c < 1$. La valeur maximale de τ_c , donc de τ_2 , est alors de 5 ps . Nous avons retenu cette valeur pour τ_2 . Ce temps est proche de celui déterminé pour la boîte LG (10 ps). L'énergie d'activation du couplage aux phonons optiques vaut 30 meV . Cette énergie de phonon optique est voisine de l'énergie caractéristique des phonons optiques dans le GaAs massif (36 meV) et dans l'InAs (32 meV).

Le temps caractéristique associé au couplage avec les phonons acoustiques est plus grand ($\tau_1 = 200 \text{ ps}$) que celui associé aux phonons optiques ($\tau_1 = 5 \text{ ps}$), ce comportement est analogue à celui de la boîte LG. Mais la différence est moins grande. Ceci peut s'expliquer si on considère des défauts moins profonds, ce qui facilite le couplage avec les phonons acoustiques. Enfin, le temps caractérisant l'échappement par effet Auger est beaucoup plus petit pour la boîte A (35 ps)

que pour la boîte LG (1.6 ns). Les pièges de la boîte A semblent donc plus sensibles à l'effet Auger, ceci est peut être dû encore une fois au fait que les défauts sont moins profonds.

Après avoir montré que notre modèle microscopique de fluctuations de l'environnement permettait de reproduire exactement l'évolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon, nous souhaitons déterminer une expression théorique de l'élargissement (4.34) à basse température. Cette étude est décrite dans la section suivante.

Modélisation de l'élargissement en température à basse température

L'élargissement mesuré expérimentalement est décrit par l'expression 4.34.

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, cet élargissement en température n'était pas encore expliqué. Nous allons montrer comment la diffusion spectrale en régime de rétrécissement par le mouvement nous permet d'interpréter quantitativement l'élargissement observé pour la boîte A.

La largeur à mi-hauteur en régime de rétrécissement vaut :

$$\Gamma = 2\hbar\Sigma^2\tau_c \quad (4.37)$$

Dans un régime où $\tau_\uparrow \gg \tau_\downarrow$, Σ se simplifie en :

$$\Sigma = \frac{2\Sigma_s}{\sqrt{\frac{\tau_\uparrow}{\tau_\downarrow}} + \sqrt{\frac{\tau_\downarrow}{\tau_\uparrow}}} \simeq 2\Sigma_s \sqrt{\frac{\tau_\downarrow}{\tau_\uparrow}} \quad (4.38)$$

Ainsi dans la limite $\tau_\uparrow \gg \tau_\downarrow$, l'expression 4.37 devient :

$$\Gamma = \frac{8\hbar\Sigma_s^2\tau_\downarrow^2}{\tau_\uparrow} \quad (4.39)$$

Si τ_\downarrow n'évolue pas avec la température ou la puissance d'excitation, ce qui est le cas dans les différents exemples analysés plus haut, Γ dépend linéairement de $1/\tau_\uparrow$ d'après l'égalité 4.39. A basse puissance d'excitation, seul l'échappement assisté par phonon acoustique est activé avec la température. Dans le régime de température où $E_1 \ll kT$, le temps d'échappement est décrit par l'expression :

$$\frac{1}{\tau_\uparrow} \propto \frac{1}{\tau_1} k_b T / E_1 \quad (4.40)$$

Nous retrouvons bien un élargissement de la forme :

$$\Gamma(T) = \alpha T = \frac{8\hbar\Sigma_s^2\tau_\downarrow^2 k_B}{\tau_1 E_1} T \quad (4.41)$$

A partir des paramètres d'ajustement détaillés plus haut pour la boîte A, la valeur théorique de l'élargissement à basse puissance (α_0) vaut $1.47 \mu\text{eV.K}^{-1}$, en

accord avec l'élargissement mesuré expérimentalement ($1.5 \pm 0.3 \mu\text{eV.K}^{-1}$).

Si le temps d'échappement se rapproche du temps de capture, l'approximation 4.38 sur le calcul de Σ n'est plus valable. Γ ne dépend plus linéairement de $1/\tau_{\uparrow}$ car Σ s'approche de la valeur à saturation Σ_s et la largeur à mi-hauteur sature également. A basse puissance, la température seule, ne parvient pas à saturer l'élargissement de la raie. A forte puissance d'excitation, l'élargissement est saturé et ne dépend plus de la température. Cette différence de comportement provient du fait qu'à basse puissance d'excitation, la diffusion spectrale étant dans un régime où $\tau_{\downarrow} \ll \tau_{\uparrow}$, nous sommes loin de la saturation de l'amplitude de fluctuation Σ . Mais à forte puissance d'excitation, les processus Auger réduisent fortement le temps d'échappement τ_{\uparrow} , nous sommes dans un régime où $\tau_{\downarrow} \simeq \tau_{\uparrow}$, la plage d'augmentation de Σ est alors très réduite.

Ainsi notre modèle microscopique de la diffusion spectrale développé pour expliquer la transition de profil de la boîte LG parvient également à expliquer l'élargissement de la raie à 0 phonon pour la boîte A. Nous avons présenté l'étude de l'élargissement d'autres boîtes (B,C,D). Le comportement de la boîte C est très similaire à celui de la boîte A. L'élargissement de la raie à 0 phonon de la boîte C peut être décrit en considérant la modélisation microscopique utilisée pour la boîte A. Nous pouvons remarquer que la puissance seuil d'activation de l'effet Auger sera légèrement inférieure à celle de la boîte A, car la saturation de l'élargissement de la boîte C a lieu pour des puissances plus faibles que pour la boîte A. Pour la boîte B, l'absence d'élargissement en puissance peut s'expliquer en considérant un temps d'activation τ_3 de l'effet Auger très grand et des processus d'échappement assistés par émission de phonons identiques à ceux de la boîte A. La boîte D, quant à elle, très peu sensible à la température et à la puissance d'excitation, doit déjà être dans un régime de saturation de la diffusion spectrale.

Nous parvenons donc à comprendre l'évolution de la largeur à mi-hauteur pour différentes boîtes à partir d'un modèle de diffusion spectrale où les sources de diffusion spectrale sont des défauts extérieurs à la boîte quantique. D'autre part notre modèle de diffusion spectrale nous permet de reproduire quantitativement l'évolution en température de la largeur de raie à zéro phonon, ce que des modèles prenant en compte des couplages d'ordre supérieur avec les phonons acoustiques ne parvenaient pas à faire.

Uskov *et al* ont proposé que des fluctuations intraboîtes pouvaient aussi engendrer un élargissement de la raie 0 phonon. Nous discutons dans la section suivante la validité de ce phénomène dans nos études.

4.2.3 Fluctuation intraboîte ou extraboîte

Dans le modèle de diffusion spectrale qui vient d'être présenté, nous avons supposé que les sources de fluctuations sont des pièges hors de la boîte. Uskov

et collaborateurs [13] ont étudié théoriquement une autre source de fluctuation. Ils supposent que ce sont les fluctuations de charge de la boîte même qui en perturbent la transition fondamentale. Les deux processus de perturbation que décrit Uskov sont représentés dans la figure 4.24 :

- Le premier fait osciller l'état de la boîte entre les états de l'exciton X et de l'exciton chargé X^- (premier schéma de la fig.4.24). La boîte dans l'état X peut piéger un électron supplémentaire. La raie d'émission va donc osciller entre deux valeurs correspondant aux états X et X^- .
- Le second fait osciller l'état de la boîte entre l'état à trois charges $X^- (X, e1)$ et un état à 4 charges $X^- (X, e2h2)$ (second schéma de la fig.4.24). Le système est le plus souvent dans l'état X^- .

Nous travaillons à priori sur des états X , le premier processus semble donc plus vraisemblable. Nous allons décrire l'effet des fluctuations de l'état de la boîte sur le spectre d'émission. Le second processus aura un effet analogue.

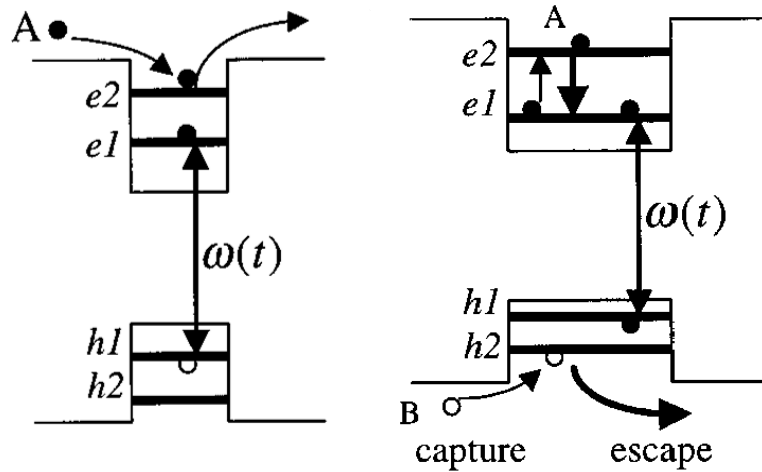


FIG. 4.24 – Deux processus de fluctuation intraboîte [13].

Calcul de la fonction de relaxation d'un TLS asymétrique

Pour le premier mécanisme de diffusion spectrale d'Uskov, l'état X^- sera très peu probable à faible pompage, mais deviendra prépondérant pour une forte densité de porteurs. Pour obtenir le spectre, Uskov développe un calcul analogue à celui présenté dans le chapitre précédent en considérant un unique TLS asymétrique couplé avec le système.

Le cas d'un TLS asymétrique a été étudié par Kubo [37]. La boîte quantique peut donc être dans deux états X et X^- non équiprobables, l'état fondamental du TLS sera l'exciton et l'état excité l'exciton chargé. T_{\uparrow} est le temps de vie de l'état X et T_{\downarrow} est le temps de vie de l'état X^- . Les probabilités d'être dans l'état

X ou l'état X^- sont données par les égalités :

$$P_X^0 = \frac{T_\uparrow}{T_\downarrow + T_\uparrow}, \quad P_{X^-}^0 = \frac{T_\downarrow}{T_\downarrow + T_\uparrow} \quad (4.42)$$

Le temps de corrélation de ce système vaut alors (voir 4.1.3) :

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{1}{T_\uparrow} + \frac{1}{T_\downarrow} \quad (4.43)$$

Nous définissons alors :

- La pulsation associée aux fluctuations du TLS déséquilibré $\omega_c = \frac{2\pi}{\tau_c} = 2\pi \left(\frac{1}{T_\uparrow} + \frac{1}{T_\downarrow} \right)$.
- La pulsation associée à la fréquence d'émission de la boîte quand le TLS est dans l'état X : $\omega_X = \omega_0 + \Delta/2\hbar$.
- La pulsation associée à la fréquence d'émission de la boîte quand le TLS est dans l'état X^- : $\omega_{X^-} = \omega_0 - \Delta/2\hbar$.
- $\omega_0 = (\omega_X + \omega_{X^-})/2$ est la moyenne arithmétique des deux pulsations possibles.
- $\bar{\omega} = P_X^0 \omega_X + P_{X^-}^0 \omega_{X^-} = \omega_0 + \bar{\Delta}/\hbar$ est la moyenne pondérée par la probabilité d'être dans l'état X ou dans l'état X^- . $\bar{\Delta}$ est alors le décalage en énergie de la raie à l'équilibre et il vaut :

$$\frac{\bar{\Delta}}{\hbar} = P_X^0 \omega_X + P_{X^-}^0 \omega_{X^-} - \omega_0 = P_X^0 \frac{\Delta}{2\hbar} - P_{X^-}^0 \frac{\Delta}{2\hbar} = \eta \frac{\Delta}{2\hbar} \quad (4.44)$$

ou η est le facteur d'asymétrie du piège défini par :

$$\eta = P_X^0 - P_{X^-}^0 = \frac{T_\downarrow}{T_\downarrow + T_\uparrow} - \frac{T_\uparrow}{T_\downarrow + T_\uparrow} = \frac{T_\downarrow - T_\uparrow}{T_\downarrow + T_\uparrow} \quad (4.45)$$

Quand η vaut 1, la boîte est uniquement dans l'état X , quand $\eta=0$, les deux états X et X^- sont équiprobables et quand $\eta=-1$, la boîte est dans l'état X^- .

A partir des paramètres définis ci-dessus, nous donnons l'expression du spectre d'émission [37] :

$$I(\omega) = 2\omega_c^2 P_X^0 P_{X^-}^0 \frac{(\omega_{X^-} - \omega_X)^2}{(\omega - \omega_{X^-})^2 (\omega - \omega_X)^2 + \omega_c^2 (\omega - \bar{\omega})^2} \quad (4.46)$$

Pour clarifier la lecture de ce spectre nous faisons le changement de variable $\omega' = \omega - \omega_0$. Le spectre s'écrit alors :

$$I(\omega') = 2\omega_c^2 P_X^0 P_{X^-}^0 \frac{\left(\frac{\Delta}{\hbar}\right)^2}{\left(\omega' - \frac{\Delta}{2\hbar}\right)^2 \left(\omega' + \frac{\Delta}{2\hbar}\right)^2 + \omega_c^2 \left(\omega' - \frac{\bar{\Delta}}{\hbar}\right)^2} \quad (4.47)$$

Par le théorème des résidus, on peut alors obtenir la fonction de relaxation associée :

$$\phi(\tau) = \frac{1}{2F} \left[(1 + F + i\eta x) e^{-\frac{\tau}{2\tau_c}(1-F)} - (1 - F + i\eta x) e^{-\frac{\tau}{2\tau_c}(1+F)} \right] \quad (4.48)$$

avec

$$x = \frac{\Delta}{\hbar\omega_c} \text{ et } F^2 = 1 - x^2 + 2i\eta x \quad (4.49)$$

Quand le facteur d'asymétrie η tend vers 0, l'expression de la fonction de relaxation de l'égalité 4.48 tend vers la fonction de relaxation obtenue dans le cas d'un TLS symétrique (formule 3.33, page 69) .

Dans un régime de fluctuations lentes $x = \frac{\Delta}{\hbar\omega_c} \gg 1$, F est imaginaire pur. Les deux raies X et X^- apparaissent chacune avec un poids proportionnel à la probabilité que la boîte soit dans l'état correspondant. La structure du spectre obtenu est représentée sur la figure (a) de la figure 4.25. Pour une valeur de η proche de 1, seule la raie excitonique apparaît, centrée sur $\omega = \omega_X$.

Dans un régime de fluctuations rapides $x = \frac{\Delta}{\hbar\omega_c} \ll 1$, le système est en régime de coalescence. Ce régime est représenté pour différentes valeurs de η sur la figure (c) de 4.25. Quel que soit η , le profil reste toujours lorentzien. Si η varie entre 1 et 0 il y a élargissement de la raie. Pour $\eta = 0$, il y a saturation de cet élargissement et dans ce cas la largeur à mi-hauteur est donnée par l'expression.

$$\Gamma_{sat} = \Delta \left(\frac{\Delta\tau_c}{\hbar} \right) \quad (4.50)$$

où Δ est l'écart d'énergie entre les raies X et X^- et τ_c est le temps de corrélation des fluctuations. Enfin, pour des valeurs de η négatives, il y a rétrécissement de la raie. Ainsi, la largeur à mi-hauteur de la raie est majorée par sa valeur à $\eta = 0.5$. Le cas de la figure 4.25 (b) correspond au cas intermédiaire où les raies apparaissent encore mais commencent à coalescer.

Ce modèle de diffusion spectrale ne peut expliquer ni l'élargissement de raie de la boîte A, ni le changement de profil de la boîte LG. Pour cette dernière, nous avons vu que l'élargissement avec la température et la puissance d'excitation s'accompagnait d'une modification de profil, la raie à 0 phonon passant d'un profil lorentzien à un profil gaussien. Si le modèle d'Uskov peut expliquer l'élargissement, la boîte doit être dans un régime de coalescence (une seule raie dans le spectre). Or dans ce régime le profil reste lorentzien quelles que soient les populations moyennes de l'état X et de l'état X^- , ce qui n'est pas le cas des résultats expérimentaux pour la boîte LG. Le modèle de Uskov ne peut expliquer la transition de profil observé.

Pour la boîte A nous avons une saturation de l'élargissement à $200 \mu eV$. En supposant que les fluctuations $X - X^{-1}$ de l'état de la boîte sont la source de la diffusion spectrale (premier processus de Uskov), l'énergie qui sépare les deux états X et X^- étant de $\Delta = 5 meV$, la largeur à saturation de l'élargissement

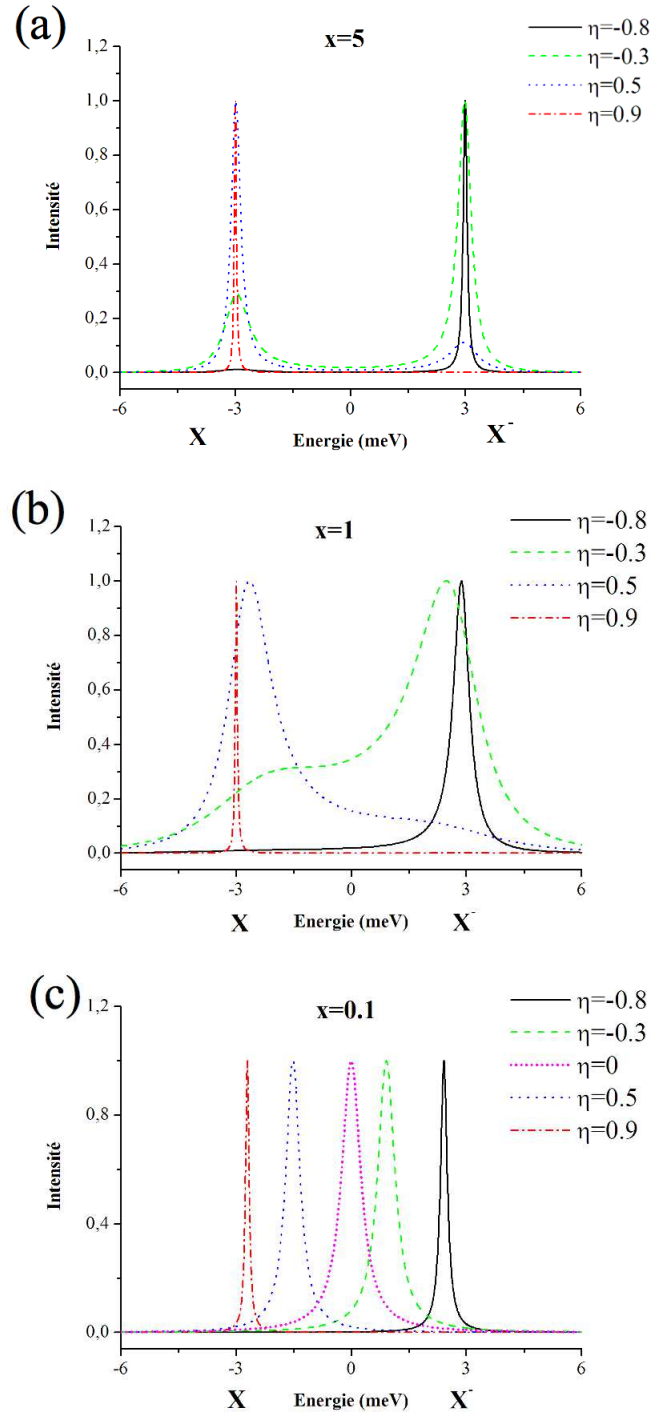


FIG. 4.25 – Evolution du spectre d'émission de la boîte quantique en fonction du paramètre η , pour trois valeurs de x différentes : (a) $x = 5$, (b) $x = 1$ et (c) $x = 0.1$.

valant $200 \mu eV$, d'après l'équation 4.50, on doit avoir un temps de corrélation des fluctuations de l'ordre de $5 fs$, ce qui implique des temps d'échappement très courts (fs). Comme les temps mesurés expérimentalement sont au mieux de l'ordre de $500 fs$ [105], nous concluons que ce modèle de coalescence entre les raies X et X^- ne peut expliquer l'élargissement mesuré sur l'ensemble de nos boîtes contrairement à un modèle utilisant des pièges externes à la boîte quantique.

4.2.4 Conclusion

Dans le chapitre présentant les dispositifs expérimentaux (Chap.2), nous avons présenté une interprétation quantitative de nos données à partir d'un modèle basé sur la théorie de la diffusion spectrale de Kubo-Anderson complété par une description microscopique des fluctuations de l'environnement de la boîte quantique.

Les sources de fluctuation sont des défauts, situés autour de la boîte, pouvant piéger des charges. En considérant un ensemble de pièges répartis sur un plan horizontal contenant la boîte quantique, nous pouvons calculer les fluctuations de l'énergie de la paire électron-trou engendrées par le piégeage et le dépiégeage des charges dans les défauts. Suffisamment nombreux, ces défauts engendrent un bruit distribution gaussienne qui explique le contraste de Kubo observé expérimentalement.

Cette modélisation permet d'interpréter de manière quantitative les élargissements de la raie à 0 phonon de l'exciton fondamental en fonction de la température et de la puissance d'excitation. A basse température ou basse puissance d'excitation, la diffusion spectrale est caractérisée par des perturbations rapides, $\Sigma\tau_c < 1$. La boîte quantique est dans un régime de rétrécissement par le mouvement ; le spectre de raie, lorentzien, est fin car les fluctuations d'énergie sont moyennées. En élevant la température, l'amplitude de fluctuation augmente faisant passer la diffusion spectrale d'un régime de fluctuations rapides à un régime de fluctuations lentes. Ce résultat provient du fait que les fluctuations de charges autour de la boîte quantique dépendent de deux temps caractéristiques : τ_\downarrow et τ_\uparrow . Seul le processus de dépiégeage est sensible au changement de puissance ou de température. La réduction de τ_\uparrow n'est pas assez importante pour que le temps de corrélation change, mais permet une augmentation de l'amplitude des fluctuations Σ , donc du produit $\Sigma\tau_c$. C'est donc la valeur de τ_\uparrow qui impose le régime de diffusion spectrale.

A présent nous souhaitons contrôler la diffusion spectrale affectant la boîte quantique et rendre cette dernière moins sensible aux fluctuations. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous utilisons donc un champ électrique transverse dans le but de contrôler les fluctuations des charges autour de la boîte.

4.3 Boîte quantique sous champ électrique

Inclure les boîtes quantiques dans des hétérostructures sous champ électrique transverse permet d'étudier l'absorption d'une boîte quantique unique par spectroscopie de photocourant. Ainsi plusieurs groupes ont mesuré des largeurs homogènes d'une boîte quantique unique très proche de la limite radiative (voir Chap. 1). En 2001, Abstreiter *et al* puis Oulton *et al* en 2002 ont étudié l'évolution de la largeur de raie d'une boîte quantique en fonction du champ électrique [83, 14] par des expériences de photocourant et de photoluminescence. Outre le décalage de la raie par effet Stark qui sera détaillé dans la suite de ce manuscrit, ils remarquent que la boîte quantique en régime de photocourant présente un élargissement dépendant du champ électrique. Cet élargissement provient de la réduction du temps de vie de l'exciton par effet tunnel. Oulton *et al* parviennent à modéliser parfaitement l'élargissement homogène de la raie avec le champ électrique. En supposant que l'effet tunnel se produit uniquement selon l'axe de croissance, ils réduisent le problème d'échappement à une dimension. La méthode WKB permet alors de calculer le taux d'émission $R_{e,h}$ par effet tunnel des électrons et des trous :

$$R_{e,h} = \frac{\hbar\pi}{2m_{e,h}^*L^2} \exp \left[\frac{-4}{3\hbar e\mathcal{F}} \sqrt{2m_{e,h}^*E_i^3} \right] \quad (4.51)$$

où $m_{e,h}^*$ est la masse effective des électrons ou des trous, L est la largeur de la boîte, \mathcal{F} est la norme du champ électrique régnant au sein de l'échantillon et E_i est l'énergie d'ionisation de la charge considérée. Ce taux d'émission se décompose en deux termes : le premier terme $\frac{\hbar\pi}{2m_{e,h}^*L^2}$ correspond à la fréquence de choc de l'électron sur la barrière tunnel, le second terme $\exp \left[\frac{-4}{3\hbar e\mathcal{F}} \sqrt{2m_{e,h}^*E_i^3} \right]$ est la transmission de la barrière tunnel.

Oulton montre alors que ce sont d'abord les électrons (plus légers que les trous) qui sont sensibles à l'effet tunnel. Une réduction du temps de vie de l'exciton provoquée par l'échappement tunnel de l'électron de la boîte quantique permet de reproduire théoriquement les résultats expérimentaux (figure 4.26).

La fuite des porteurs s'accompagne d'une diminution du signal de photoluminescence et n'est donc observée facilement qu'en photocourant. Les états d'une boîte quantique sont donc peu affectés par cet élargissement tunnel tant que le signal de photoluminescence ne diminue pas. Mais le champ électrique peut, par contre, affecter par effet tunnel les charges piégées dans des niveaux moins profonds que les boîtes quantiques.

Nous voulons contrôler la dynamique de fluctuation de l'environnement des boîtes quantiques. La première partie de ce chapitre a permis de souligner le rôle essentiel que joue le temps d'échappement des pièges. τ_{\uparrow} est affecté par un changement de température du milieu ou de puissance d'excitation, et c'est ce temps que nous espérons contrôler par effet tunnel avec une tension continue.

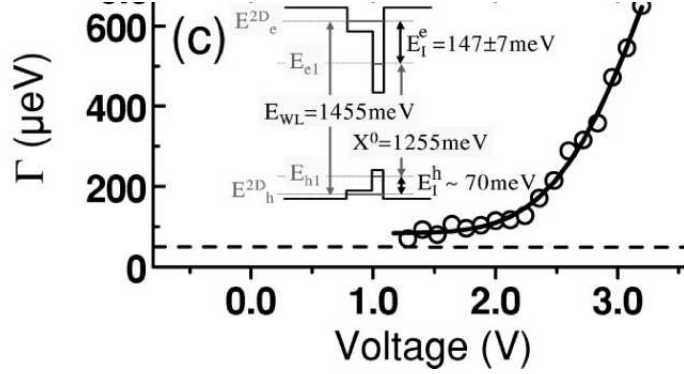


FIG. 4.26 – Evolution de la largeur à mi-hauteur Γ de l'exciton neutre, mesurée par spectroscopie de photocourant en fonction de la tension appliquée : résultats expérimentaux (cercles) et modélisation par approximation WKB (trait plein)[14].

Avant de présenter nos résultats sur le contrôle de ce temps, nous allons caractériser la boîte étudiée.

4.3.1 Caractérisation de la boîte quantique sous champ électrique

Pour cette étude nous utilisons l'échantillon 2 (voir Chap. 2), dans lequel les boîtes quantiques sont incluses dans des structures Schottky. Nous présentons sur la figure 4.27, l'évolution avec la tension appliquée du signal de photoluminescence d'une boîte quantique de cet échantillon. La suite de ce chapitre sera consacré à cette boîte particulière.

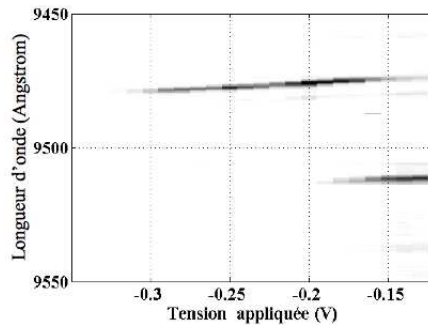


FIG. 4.27 – Cartographie de la photoluminescence d'une boîte quantique en fonction de la tension appliquée pour une puissance d'excitation de 0.80 kW.cm^{-2} et une température de 10 K.

Identification de la boîte quantique

L'état de charge de la boîte est contrôlé par la tension appliquée [106, 81]. Sur la figure 4.27, apparaissent deux raies. La première raie ($\lambda=9475 \text{ \AA}$) existant dans le domaine de tension $(-0,30 \text{ V}/-0,15 \text{ V})$ correspond à l'exciton X . La raie X^- apparaît pour les tensions supérieures à $-0,17 \text{ V}$. La différence d'énergie entre les raies X et X^- est d'environ 6 meV et elle est caractéristique de la transition $X - X^-$; d'après le second chapitre elle est égale à la différence $E^{ee} - E^{hh}$. La valeur obtenue est en accord avec les résultats d'autres groupes : 6 meV pour le groupe de Warburton [81], $5,5 \text{ meV}$ pour le groupe de Skolnick [82] et 7 meV d'après les résultats de Sabine Laurent [16] et d'autres groupes [81, 82, 83].

Effet Stark confiné

Dans cette section, nous expliquons l'effet du champ électrique sur le spectre d'émission de la boîte quantique. Nous voyons que cette boîte a une énergie de transition qui diminue quand le champ électrique augmente, c'est l'effet Stark. Ce phénomène est analogue à celui observé dans les puits quantiques [107]. L'effet Stark peut être important, si le champ électrique couple l'état S de la boîte à des états S d'autres boîtes quantiques [1]. Pour une boîte quantique isolée, cet effet Stark est réduit par rapport à l'effet Stark des puits quantiques.

Fry *et al* ont effectué une étude complète de ce phénomène [15]. L'évolution de l'énergie de transition pour quatre ensembles de boîtes différents est représentée sur la figure 4.28. Ils ont montré qu'il existait une dépendance entre le champ électrique et l'énergie de l'exciton de la forme :

$$E_X = E_0 + pF + \beta F^2 \quad (4.52)$$

où E_0 est l'énergie de recombinaison de l'exciton à champ nul, p le dipôle permanent de l'exciton contenu dans la boîte quantique. Le troisième terme traduit le couplage entre le champ électrique et le dipôle induit par ce même champ. Contrairement à la phénoménologie observée dans les puits quantiques, le maximum de l'énergie de recombinaison de la paire électron-trou n'est pas à champ électrique nul (voir fig.4.28).

Cette différence provient du terme linéaire p . En effet, la boîte quantique possède un dipôle permanent car les positions moyennes de l'électron et du trou dans la boîte sont différentes : elles ne se situent pas à la même hauteur ($\Delta z=0.02 \text{ nm}$) dans la boîte quantique à champ nul. Ceci provient des inhomogénéités spatiales de la composition chimique de la boîte. Le trou est localisé à la base de la boîte tandis que l'électron se situe dans la pointe de la boîte quantique. Dans notre échantillon, comme la croissance s'effectue à partir du GaAs n^+ (contact Ohmique), la pointe des boîtes est orientée vers le contact Schottky. Ainsi la boîte quantique possède un dipôle permanent p qui s'oriente du contact Schottky vers le contact Ohmique. Dans le régime de tensions appliquées, nous sommes dans

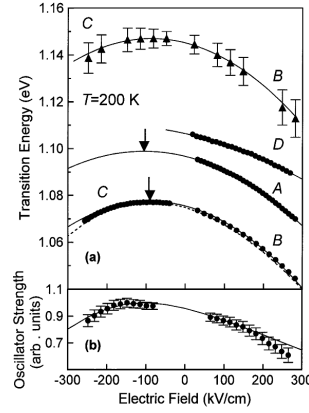


FIG. 4.28 – Evolution de l'énergie de transition en fonction du champ électrique régnant pour 4 échantillons [15].

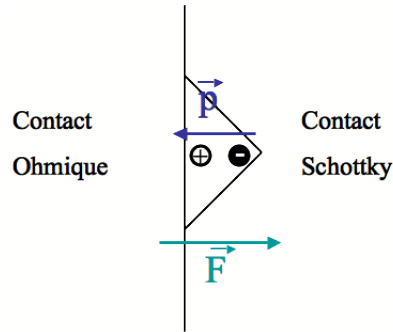


FIG. 4.29 – Représentation schématique de notre configuration d'étude : le champ électrique s'oppose au dipôle permanent de la boîte.

une situation où le champ électrique s'oppose au dipôle permanent et a donc tendance à réduire la distance entre électron et trou (voir figure 4.29), ce qui réduit le décalage Stark. Cette situation correspond au sommet des courbes de la figure 4.28 dans la zone des champs électriques négatifs.

Dans notre étude, la variation du champ électrique est assez faible (90 à 100 $kV.cm^{-1}$) et une approximation linéaire est suffisante pour décrire les variations d'énergies.

Effet de la charge d'espace

Nous étudions à présent l'effet de la puissance d'excitation sur l'émission de la boîte quantique étudiée dans la figure 4.27. Cette boîte est caractérisée par une énergie de recombinaison de 1.309 eV pour une tension appliquée de -0.2 V. Nous constatons que les domaines d'existence de la raie excitonique dépendent de la puissance d'excitation. Sur la figure 4.30, nous pouvons voir l'évolution de l'intensité d'émission de la boîte avec la tension appliquée pour deux puissances de

pompage. La première figure est réalisée avec une puissance de pompage de 0.88 kW.cm^{-2} , la deuxième est obtenue avec une puissance de pompage double (1.76 kW.cm^{-2}). On peut constater qu'à faible puissance le signal est maximal autour de -0.2 V , alors qu'à forte puissance de pompage, le signal de photoluminescence reste très intense sur un domaine compris entre -0.21 V et -0.27 V . Le domaine d'existence de l'exciton neutre semble se décaler vers les tension négatives, c'est le phénomène de charge d'espace.

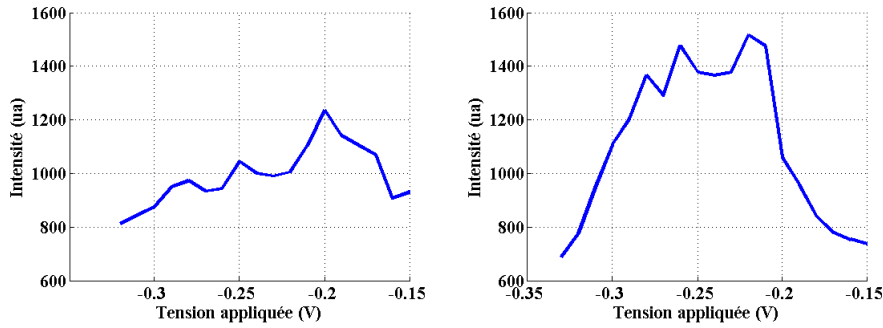


FIG. 4.30 – Evolution de l'intensité de la raie excitonique de la boîte caractérisée par une énergie de recombinaison valant 1.309 eV à -0.2 V . La figure de gauche correspond à une puissance d'excitation de $0,88 \text{ kW.cm}^{-2}$ et celle de droite à une puissance de 1.76 kW.cm^{-2} .

Smith fournit une explication de ce phénomène [108]. Cet effet se produit quand une excitation non résonante génère un grand nombre de charges libres. Les trous peuvent être piégés dans le puits quantique triangulaire qui apparaît dans la bande de valence (voir fig.4.31) [6]. Ces trous piégés vont induire un champ électrique s'opposant à celui régnant dans l'échantillon. Ainsi la tension effective est plus petite que la tension mesurée. Le domaine d'existence de X est donc décalé vers les tensions négatives quand la densité de porteurs libres augmente.

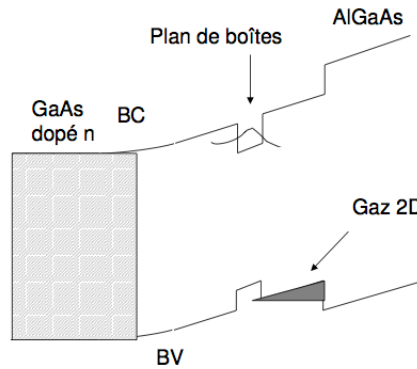


FIG. 4.31 – Existence d'un gaz de trous bidimensionnel [16].

4.3.2 Evolution du profil de raie excitonique sous champ électrique transverse

Après avoir caractérisé la boîte quantique, nous présentons l'étude de l'évolution du profil spectral en fonction de la tension appliquée et de la température. Le protocole expérimental est identique à celui utilisé lors des expériences sans champ électrique présentées précédemment. Nous utilisons le laser He-Ne (1.96 eV) comme source d'excitation non résonante continue. La puissance de pompage choisie (0.88 kW.cm^{-2}) est telle que le signal de photoluminescence de la boîte ne soit pas saturé. Ainsi nous avons un niveau de signal élevé sans être gêné par la présence du biexciton.

Evolution du profil à 10K

Nous représentons sur la figure 4.32 l'évolution du contraste pour 5 tensions différentes variant entre -0.18 V et -0.26 V . Cette plage de tension correspond à un champ électrique variant entre 96 kV.cm^{-1} et 100 kV.cm^{-1} . Les variations relatives du champ électrique sont très faibles ($\approx 4\%$) mais comme il apparaît sur la figure 4.32, l'effet sur le profil est très important.

Dans la première partie de ce dernier chapitre, nous avons vu que la décroissance du contraste était gaussienne, lorentzienne ou intermédiaire. Or ici il apparaît en plus un battement plus ou moins prononcé dans la décroissance du contraste. On voit sur la figure 4.32(c), qui correspond à une tension de -0.22 V , que pour un retard de 45 ps , le contraste descend en dessous de 0.1. Le contraste enregistré ne peut être inférieur à cette valeur limitée par le rapport signal sur bruit. Hormis la tension -0.18 V , le contraste présente un battement pour des retards supérieurs à 45 ps . La présence de ce battement suggère que le spectre d'émission de la boîte quantique est un doublet. Ce doublet n'est pas dû à l'anisotropie de la boîte quantique (voir chapitre 1), car l'amplitude du battement est indépendante de la polarisation de la détection. Nous pouvons calculer l'énergie séparant les deux raies : $44 \text{ } \mu\text{eV}$. Le fait que le battement apparaisse plus ou moins en fonction de la tension appliquée nous permet de conclure que le poids relatif des deux raies change avec le champ électrique.

Evolution du profil à 30K

Nous décrivons à présent les résultats de l'étude en tension obtenus pour une température de 30 K . Ces résultats sont représentés sur la figure 4.33 après soustraction du fond selon le protocole décrit plus haut. D'autre part, le domaine d'étude est décalé car la température réduit trop l'intensité de luminescence pour des tensions $V_a > -0.2 \text{ V}$ et nous avons tracé l'évolution du contraste à 30 K pour 5 tensions différentes (de -0.20 V à -0.28 V). La structure de battement a disparu, il ne semble plus exister de doublet dans le domaine spectral ce qui révèle un effet très intéressant.

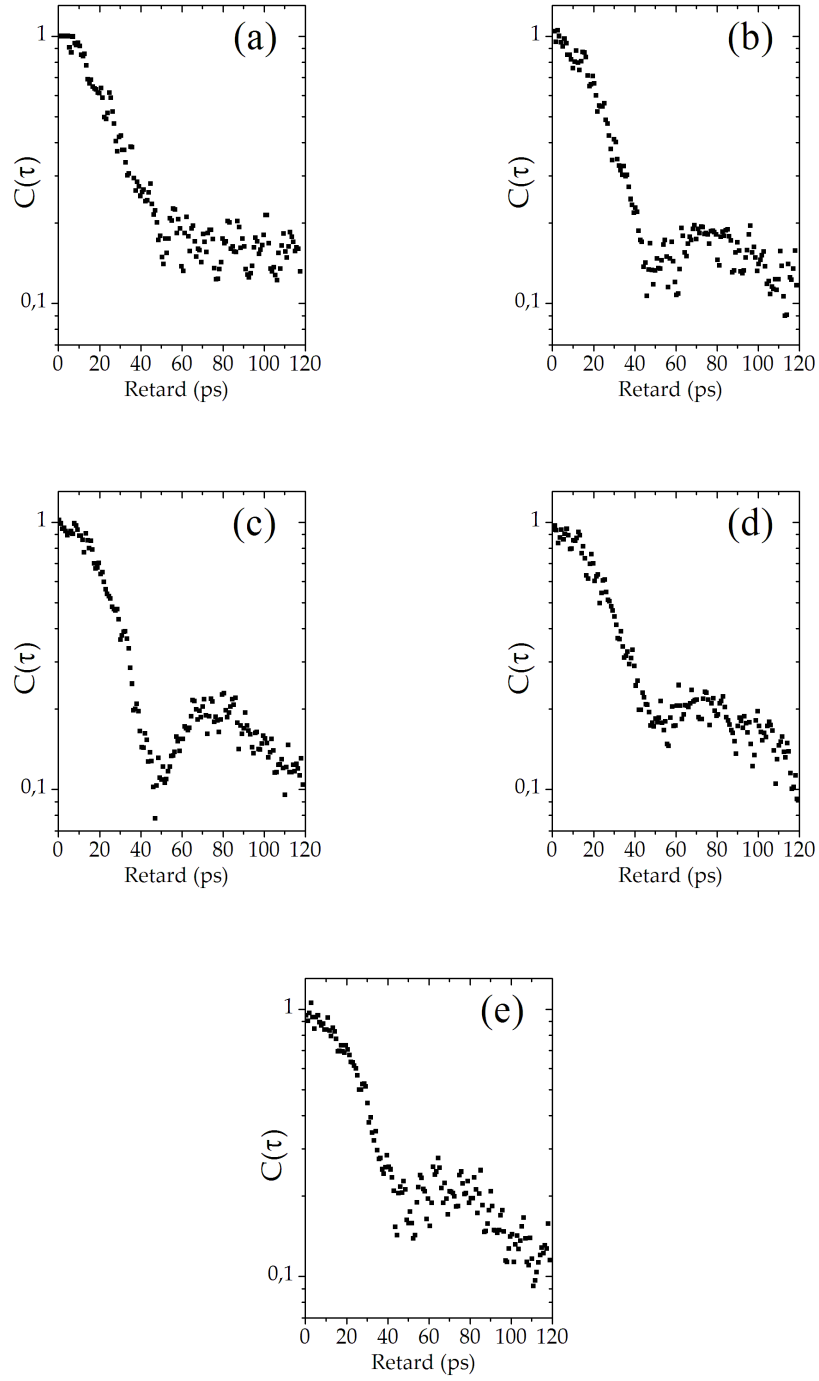


FIG. 4.32 – Evolution du contraste en fonction de la tension appliquée pour $T=10$ K et $P=0.88 \text{ kW.cm}^{-2}$ pour différentes tensions : (a) $V_a = -0.18V$, (b) $V_b = -0.20V$, (c) $V_a = -0.22V$, (d) $V_a = -0.24V$ et (e) $V_a = -0.26V$.

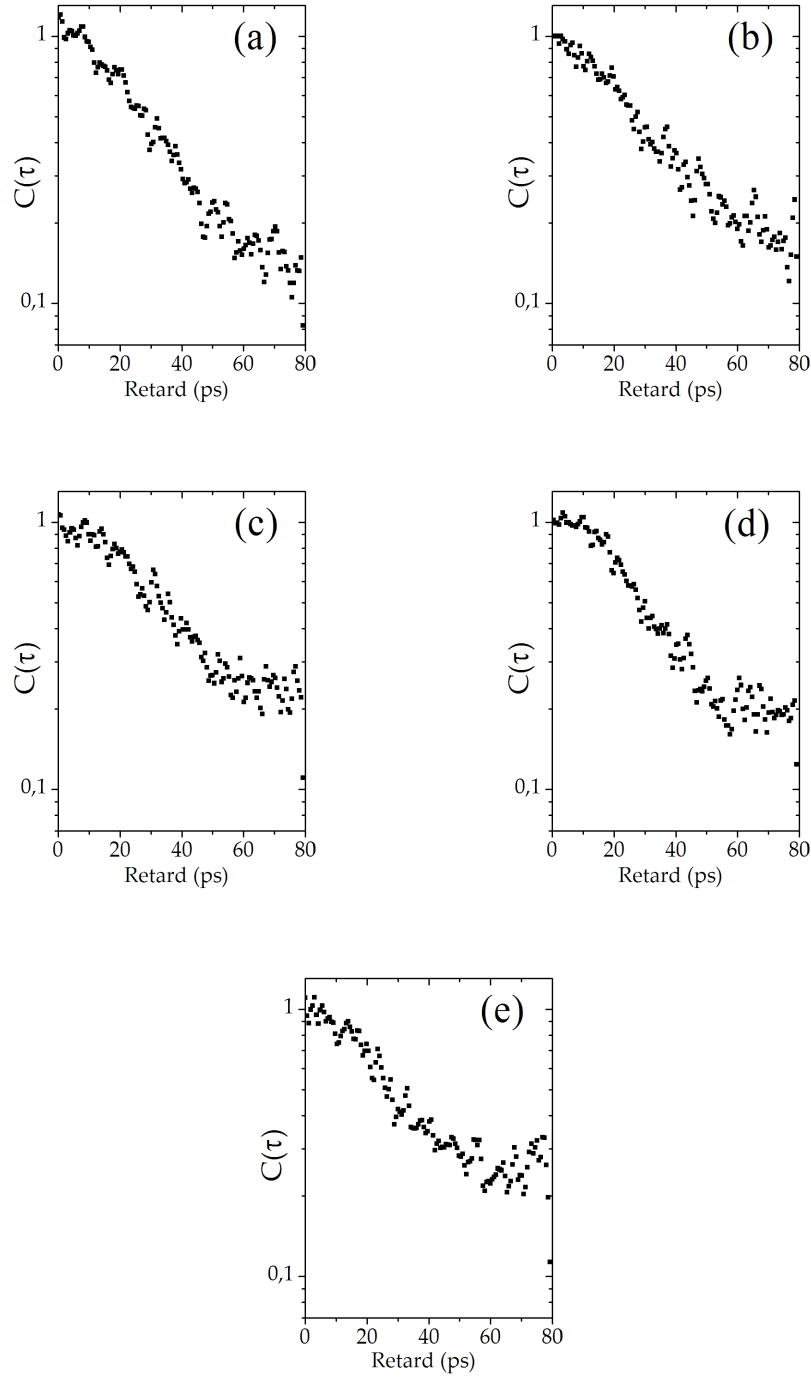


FIG. 4.33 – Evolution du contraste en fonction de la tension appliquée pour $T=30\text{ K}$ et $P=0.88\text{ kW.cm}^{-2}$ pour différentes tension : (a) $V_a = -0.20V$, (b) $V_b = -0.22V$, (c) $V_a = -0.24V$, (d) $V_a = -0.26V$ et (e) $V_a = -0.28V$.

Nous observons que la décroissance du contraste est moins rapide pour une tension appliquée de -0.28 V que pour une tension de -0.22 V . Une augmentation du champ électrique semble donc réduire la largeur de la raie à 0 phonon. Ce résultat est très intéressant à de nombreux points de vue.

Il est contraire aux études de Oulton *et al* présentées au début de cette section où un élargissement de la raie était observé en photocourant quand le champ électrique augmentait à cause d'une réduction du temps de vie de l'exciton par effet tunnel. Dans notre cas, le champ électrique F parvient au contraire à réduire la largeur de raie de la boîte obtenue en spectroscopie de photoluminescence. Dans notre cas, il semble que nous réalisons un contrôle électrique de la diffusion spectrale où le champ électrique peut modifier le régime de fluctuations de l'environnement.

Pour résumer nos résultats expérimentaux à 10 K et 30 K , nous observons qu'à 10 K le spectre de photoluminescence de la boîte quantique est un doublet dans lequel l'intensité de chaque raie dépend de la tension appliquée. A 30 K , une raie a disparu. Nous pouvons alors voir directement l'effet d'une augmentation du champ électrique sur la largeur de raie : il y a diminution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon lorsque le champ électrique augmente. Dans la section suivante, nous allons montrer comment la modélisation de l'environnement par des TLS différents permet d'interpréter quantitativement les résultats obtenus à 30 K mais aussi à 10 K .

4.3.3 Modélisation

Existence de différents pièges

Lors de la présentation de notre modèle de fluctuations, nous avons fait l'hypothèse que tous les pièges étaient équivalents. L'existence d'un doublet dont la visibilité est fonction de la tension appliquée V_a suggère la présence de plusieurs classes de pièges, sources de fluctuations de l'environnement. Nous allons décrire comment cette situation change la fonction de relaxation du système.

Si ces sources de fluctuations sont décorrélées, les fonctions de relaxation correspondant à chaque TLS se multiplient (voir équation 3.57 page 74). De sorte que la fonction de relaxation totale est décrite par l'expression :

$$\phi_N(\tau) = \prod_{i=1:N} \Phi_{1i}(\tau) \quad (4.53)$$

Nous proposons de scinder ces N TLS en $N-1$ TLS équivalents et 1 TLS singulier. De ce fait, la fonction de relaxation s'écrit

$$\phi_N(\tau) = (\Phi_1(\tau))^{N-1} \times (\Phi_{1s}(\tau)) \quad (4.54)$$

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, si $N \gg 1$ nous sommes dans la limite gaussienne, la fonction de relaxation vaut alors :

$$\phi_N(\tau) = \Phi_{Kubo}(\tau) \times \Phi_{1s}(\tau) \quad (4.55)$$

Ainsi, la fonction de relaxation du système sera le produit d'une fonction de relaxation, donnée par la formule de Kubo, et d'une fonction de relaxation à un TLS.

Nous posons d'une part, τ_{c1} le temps de corrélation caractérisant les $N-1$ pièges équivalents et d'autre part, τ_{c2} le temps de corrélation du piège singulier. Σ est l'écart-type des fluctuations de pulsation gaussiennes dues aux $N-1$ pièges et δ le décalage Stark caractérisant le TLS singulier.

4.3.4 Analyse des résultats

4.3.5 Choix de la fonction contraste

L'expression du contraste que nous utilisons pour les ajustements est :

$$C(\tau) = |\Phi_N(\tau)| = C_{Kubo}(\tau)C_{1s}(\tau) \quad (4.56)$$

avec

$$C_{1s}(t) = \left| \sum_{\epsilon \pm 1} \left(\frac{1}{2F} (1 + \epsilon F + i\eta x) e^{-\frac{t}{2\tau_{c2}}(1 - \delta F)} \right) \right| \quad (4.57)$$

et

$$C_{Kubo}(\tau) = \exp \left(-\Sigma^2 \tau_{c1}^2 \left(\exp \left(\frac{-|\tau|}{\tau_{c1}} \right) + \frac{-|\tau|}{\tau_{c1}} - 1 \right) \right) \quad (4.58)$$

Les paramètres d'ajustements associés au piège singulier sont le temps d'échappement de ce piège $\tau_{\uparrow 2}$, le temps de piégeage $\tau_{\downarrow 2}$ et δ le décalage Stark associé. Nous avons donc les expressions :

$$\tau_{c2} = \frac{\tau_{\uparrow 2} \tau_{\downarrow 2}}{\tau_{\downarrow 2} + \tau_{\uparrow 2}} \text{ et } \eta = \frac{\tau_{\uparrow 2} - \tau_{\downarrow 2}}{\tau_{\downarrow 2} + \tau_{\uparrow 2}} \quad (4.59)$$

$$x = \frac{\delta \tau_{c2}}{\hbar} \text{ et } \eta = \frac{\tau_{\downarrow 2} - \tau_{\uparrow 2}}{\tau_{\downarrow 2} + \tau_{\uparrow 2}} \text{ et } F^2 = 1 - x^2 + 2i\eta x \quad (4.60)$$

Les paramètres d'ajustement associés aux $N-1$ pièges sont $\tau_{\downarrow 1}$, $\tau_{\uparrow 1}$ et $\hbar \Sigma_s$ tels que :

$$\tau_{c1} = \frac{\tau_{\uparrow 1} \tau_{\downarrow 1}}{\tau_{\uparrow 1} + \tau_{\downarrow 1}} \text{ et } \Sigma = \frac{2\Sigma_s}{\sqrt{\frac{\tau_{\downarrow 1}}{\tau_{\uparrow 1}}} + \sqrt{\frac{\tau_{\uparrow 1}}{\tau_{\downarrow 1}}}} \quad (4.61)$$

avec

$$\hbar \Sigma_s = \frac{\Delta \sqrt{N-1}}{2} \quad (4.62)$$

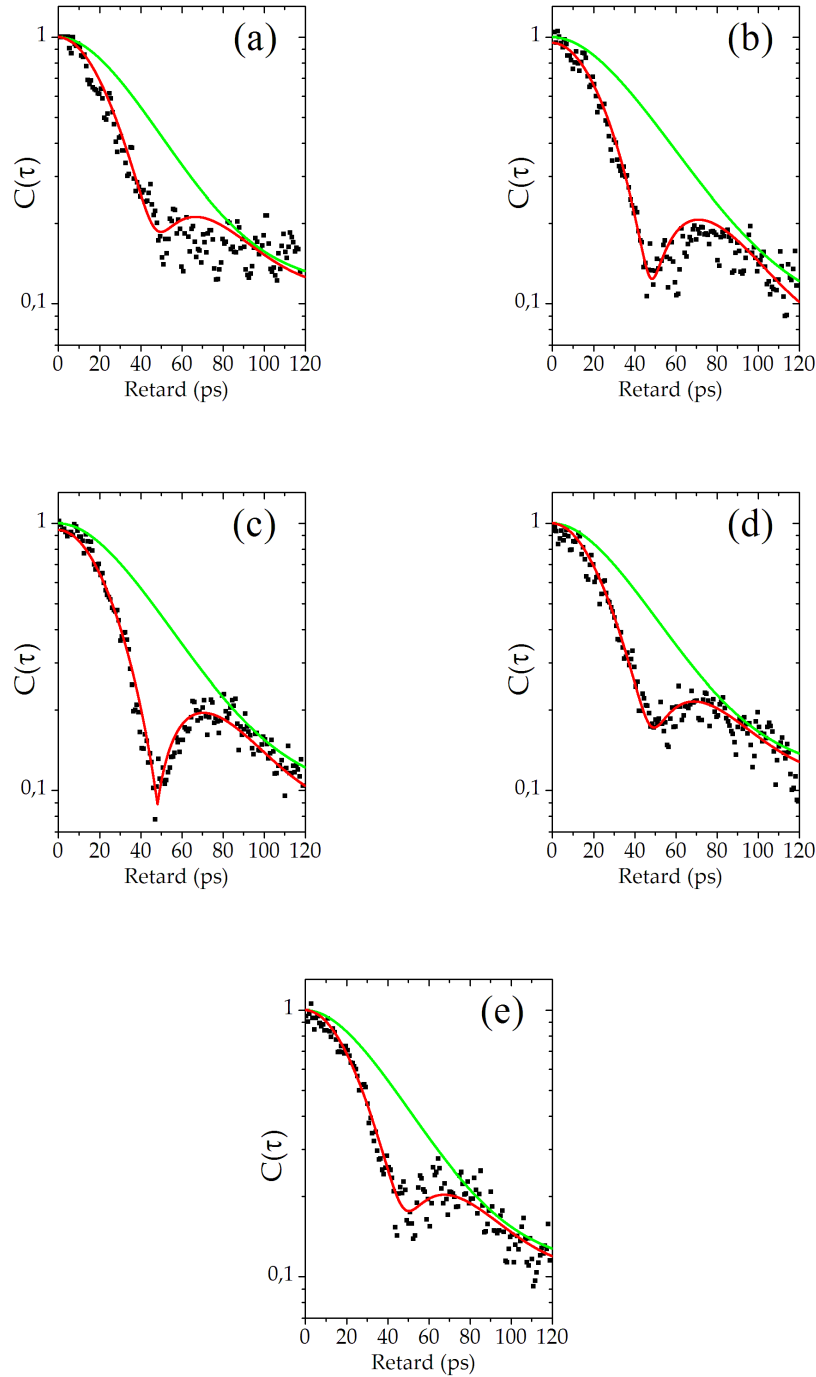


FIG. 4.34 – Evolution en tension des contrastes mesurés à 10K (carrés), des ajustements obtenus à partir de l'équation 4.56 (trait plein) et de la composante $C_{Kubo}(\tau)$ seule donnée par l'équation 4.58 (pointillés), pour différentes tensions : (a) $V_a = -0.18V$, (b) $V_b = -0.20V$, (c) $V_a = -0.22V$, (d) $V_a = -0.24V$ et (e) $V_a = -0.26V$.

Protocole d'ajustement

Tout d'abord, nous précisons qu'il est impossible d'ajuster les résultats expérimentaux à 10 K , avec un contraste de Kubo à décroissance exponentielle. Seule une décroissance gaussienne convient et valide alors l'utilisation du modèle de Kubo-Anderson pour calculer le contraste que produisent les $N - 1$ pièges. Dans la continuité de l'analyse des résultats de la première partie de ce chapitre, nous supposons que les temps de piégeage des $N-1$ TLS ($\tau_{\downarrow 1}$) et du TLS singulier ($\tau_{\downarrow 2}$) ne sont pas affectés par les changements de tension ou de température. Ainsi $\hbar\Sigma_s$, δ , $\tau_{\downarrow 1}$ et $\tau_{\downarrow 2}$ sont des paramètres d'ajustement qui doivent être communs à toutes les configurations (température, tension). Seuls les temps d'échappement $\tau_{\uparrow 1}$ et $\tau_{\uparrow 2}$ des $N - 1$ TLS identiques et du TLS singulier varient avec la tension et la température.

Les contrastes théoriques sont représentés sur les figures 4.34 (10 K) et 4.37 (30 K). Nous pouvons constater que la modélisation par le contraste défini en 4.56 permet de très bien reproduire les résultats. Sur ces figures nous avons également tracé la composante $C_{Kubo}(\tau)$ seule, issue des $N - 1$ pièges, donnée par l'équation 4.58. Nous trouvons comme paramètres d'ajustement $\hbar\Sigma_s = 56 \mu eV$, $\tau_{\downarrow 2} = 500 ps$ et $\tau_{\downarrow 1} = 45 ps$. Nous allons à présent discuter la détermination de ces valeurs.

Lors de l'analyse des résultats expérimentaux, nous avons vu que la période du battement présent à 10 K était indépendante de la tension. La différence d'énergie séparant les deux raies existantes à 10 K est donc indépendante de la tension. Ce splitting est égal au décalage Stark produit par le piège singulier que nous prenons égal à 44 μeV .

Revenons à la détermination de $\tau_{\downarrow 2}$. Nous avons supposé que les temps de piégeage des deux sortes de TLS étaient constants. Pour le piège singulier, nous constatons que la période du battement présent dans le contraste reste constante avec V_a . Ce résultat montre que le spectre engendré n'est jamais en régime de coalescence (voir chapitre trois). D'après l'équation 4.59, nous avons donc $x = \delta\tau_{c2}/\hbar \gg 1$. Connaissant δ par la mesure du battement, nous pouvons seulement fixer une borne inférieure à $\tau_{\downarrow 2}$ qui vaut 500 ps .

Il n'y a pas cette incertitude pour les $N - 1$ TLS identiques. En effet notre ajustement montre que le contraste de Kubo à décroissance gaussienne à 10 K présente une décroissance exponentielle à 30 K . Nous observons une transition lorentzien-gaussien du profil de raie. Cette transition nous permet de fixer sans ambiguïté à 45 ps le temps de piégeage des TLS identiques : 45 ps . Nous reviendrons sur cette transition ultérieurement.

Enfin, comme nous devons utiliser un contraste de Kubo pour ajuster nos résultats expérimentaux, ceci montre que les pièges associés sont en grand nombre $N - 1 \gg 1$ (d'après les résultats du chapitre 3). Comme $\hbar\Sigma_s = \Delta\sqrt{(N - 1)}/2$ est de l'ordre de δ , nous pouvons affirmer que le décalage Stark Δ , provoqué par chaque piège identique, est bien plus petit que celui dû au piège singulier δ :

$$\Delta \ll \delta \quad (4.63)$$

Evaluation des temps d'échappement

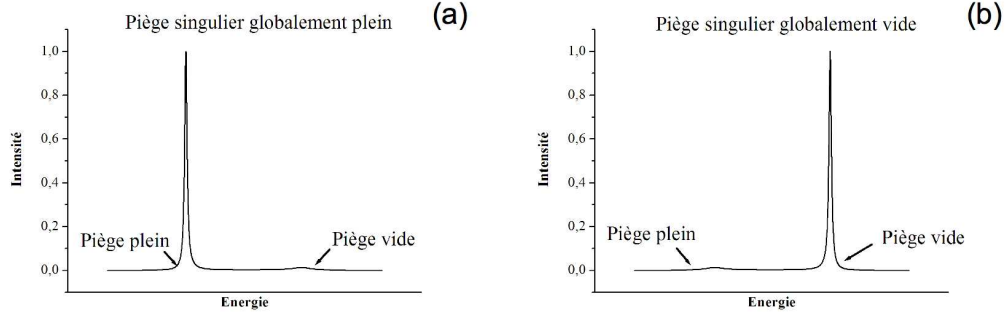


FIG. 4.35 – Spectres obtenus pour deux temps d'échappement différents. Cas du piège globalement vide (a) et cas du piège globalement plein (b).

L'évaluation des temps de dépiégeage des $(N - 1)$ TLS et du TLS singulier n'est pas immédiate. Pour le cas du piège singulier, si on fixe la valeur du temps de piégeage $\tau_{\downarrow 2}$, deux valeurs du temps de dépiégeage $\tau_{\uparrow 2}$ permettent de reproduire le battement observé : un temps "rapide" τ_2 ($\tau_2 < \tau_{\downarrow 2}$) et un temps long τ_1 ($\tau_1 > \tau_{\downarrow 2}$). Si le dépiégeage est plus lent que le piégeage, le piège singulier sera globalement plein, si le dépiégeage est plus rapide, le piège sera globalement vide. Ces deux situations sont représentées sur la figure 4.35. Dans ces deux cas, les contrastes associés aux deux spectres présenteront un battement identique. Ainsi, en ajustant le battement apparaissant dans les contrastes expérimentaux, nous pouvons trouver deux valeurs possibles pour le temps d'échappement. Il faut déterminer laquelle est justifiée physiquement.

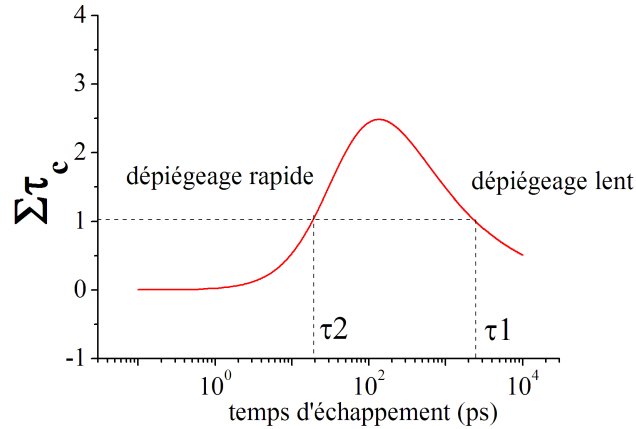


FIG. 4.36 – Evolution du produit $\Sigma\tau_{c1}$ donnée par l'équation 4.61 en fonction du temps d'échappement avec $\hbar\Sigma_s = 56 \mu eV$ et $\tau_{\downarrow 1} = 45 ps$.

Nous pouvons supposer que l'évolution des temps d'échappement avec la tension appliquée est monotone. Or d'après les résultats à 10 K , nous voyons que le contraste du battement est maximum pour $-0.22 V$: piégeage et dépiégeage sont identiques avec un doublet équilibré. Nous pouvons conclure que, soit le temps de dépiégeage $\tau_{\uparrow 2}$ diminue avec le champ électrique en passant par $\tau_{\uparrow 2} = \tau_{\downarrow 2}$ à $V_a = -0.22 V$, soit le temps de dépiégeage $\tau_{\uparrow 2}$ augmente avec le champ électrique en passant par $\tau_{\uparrow 2} = \tau_{\downarrow 2}$ à $V_a = -0.22 V$.

Si on considère que l'effet tunnel est d'autant plus efficace que le champ électrique est intense, nous pouvons supposer que le temps d'échappement est réduit pour les forts champs électriques. Ainsi plus la tension appliquée sera négative, plus le temps d'échappement du piège sera réduit. En ajustant les contrastes expérimentaux avec les paramètres précédemment détaillés, nous obtenons l'évolution du temps d'échappement pour ce piège singulier pour 10 K et 30 K (voir fig.4.38(a)). Nous ajoutons les résultats obtenus à partir de l'étude réalisée à une température de 20 K . Ils sont très proches des résultats à 30K.

Le problème est identique pour la détermination du temps d'échappement des $N - 1$ pièges. L'ajustement du contraste expérimental avec la composante de Kubo permet d'estimer $\Sigma\tau_{c1}$ et τ_{c1} . Comme le temps de piégeage est fixe, $\Sigma\tau_{c1}$ et τ_{c1} changent du fait des variations du temps d'échappement. Connaissant la dépendance de Σ et de τ_{c1} avec $\tau_{\uparrow 1}$, d'après les équations 4.61, nous pouvons calculer l'évolution théorique du produit $\Sigma\tau_{c1}$ avec le temps d'échappement comme représenté sur la figure 4.36. Nous voyons que le produit $\Sigma\tau_{c1}$ vaut 1 pour deux temps d'échappement différents : un temps τ_1 , tel que $\tau_1 \gg \tau_{\downarrow 1}$, caractérisant un dépiégeage lent et un temps τ_2 , tel que $\tau_2 \ll \tau_{\downarrow 1}$, caractérisant un dépiégeage rapide. Par le raisonnement présenté dans le paragraphe précédent, nous choisissons de même, les temps d'échappement tels qu'ils diminuent quand on augmente le champ électrique. Nous obtenons alors l'évolution du temps d'échappement pour ces $N - 1$ pièges identiques pour 10 K , 20 K et 30 K (voir fig.4.38(b)). Nous allons à présent détailler l'évolution de ces temps d'échappement obtenus par ce protocole d'ajustement.

Dans la figure 4.38 la ligne horizontale représente le temps de piégeage qui est supposé fixe. D'une part $\tau_{\uparrow 1}$ et de $\tau_{\uparrow 2}$ décroissent quand le champ électrique augmente, et d'autre part, chauffer le milieu réduit les temps d'échappement.

Evolution de la largeur à mi hauteur

La composante $C_{Kubo}(\tau)$ permet d'évaluer l'élargissement de chaque raie du doublet. Nous constatons que pour une température de 10 K , le contraste est à décroissance gaussienne, la raie a alors un profil gaussien. Pour 30 K , la décroissance du contraste $C_{Kubo}(\tau)$ est exponentielle, le profil de raie est alors lorentzien. Cette transition gaussien-lorentzien du profil de raie avec la température est la phénoménologie contraire de celle observée au début de ce chapitre. De

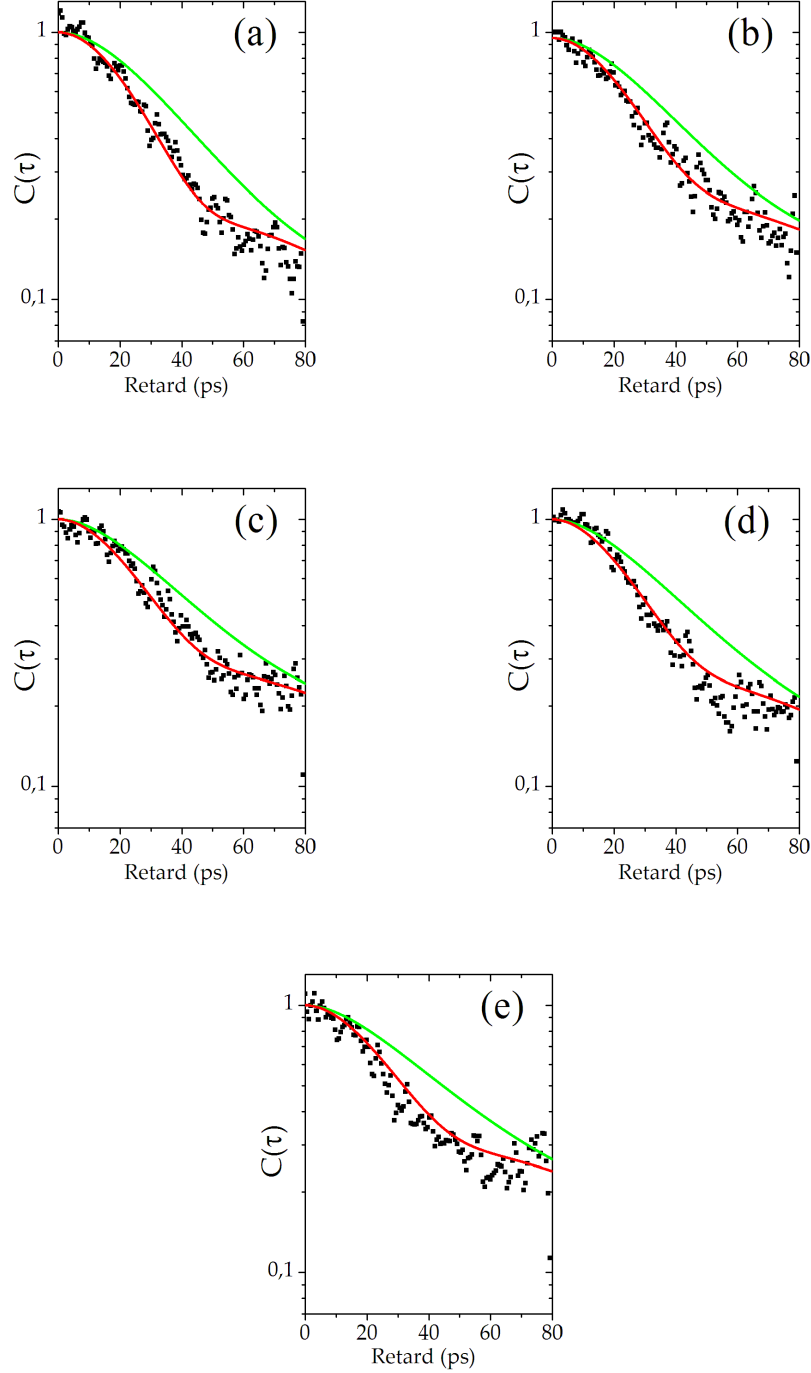


FIG. 4.37 – Evolution du contraste à 30K (carrés), des ajustements obtenus à partir de l'équation 4.56 (trait plein) et de la composante contraste $C_{Kubo}(\tau)$ seule donnée par l'équation 4.58 (pointillés) pour différentes tension : (a) $V_a = -0.20V$, (b) $V_b = -0.22V$, (c) $V_a = -0.24V$, (d) $V_a = -0.26V$ et (e) $V_a = -0.28V$.

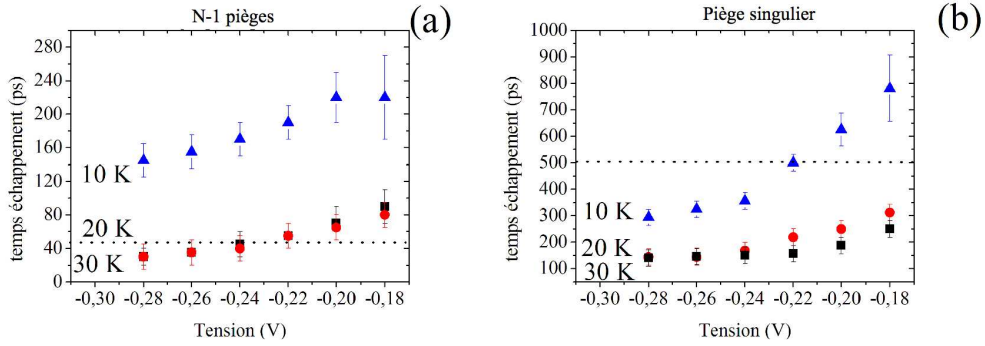


FIG. 4.38 – (a) : Evolution du temps d'échappement des N-1 pièges $\tau_{\uparrow 1}$ pour $T=10$ K, $T=20$ K et $T=30$ K. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage des N pièges $\tau_{\downarrow 1} = 45$ ps. (b) : Evolution du temps d'échappement du piège singulier $\tau_{\uparrow 2}$ pour $T=10$ K, $T=20$ K et $T=30$ K. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage $\tau_{\downarrow 2} = 500$ ps.

fait, le champ électrique change radicalement le régime de diffusion spectrale de la boîte quantique et la boîte quantique entre dans un régime de rétrécissement par le mouvement à haute température.

Selon la nature du profil, nous calculons la largeur à mi-hauteur Γ de la raie d'émission. Son évolution est représentée sur la figure 4.39 pour 10 K (a) et 30 K (b). Nous précisons bien que ces évaluations sont indépendantes du choix de monotonie de $\tau_{\uparrow 1}$ et $\tau_{\uparrow 2}$, car la largeur ne dépend que de Σ et τ_{c1} qui sont déterminés lors de l'ajustement du contraste expérimental. Nous constatons que l'évolution de Γ à 30 K est radicalement différente de celle à 10 K. A 10 K, hormis le point à -0.18 V, la largeur à mi-hauteur augmente quand la tension appliquée diminue. A 30 K c'est le contraire, ce qui correspond au ralentissement du déclin de $C(\tau)$ avec F noté plus haut : c'est la manifestation d'une réduction de la largeur de raie avec le champ électrique. Ainsi à 30 K, le rétrécissement par le mouvement caractérisé par un profil lorentzien semble être amplifié par le champ électrique. Dans la section suivante nous allons revenir sur ces évolutions qui traduisent un contrôle du rétrécissement par le mouvement par effet tunnel.

4.3.6 Contrôle du rétrécissement par le mouvement par effet tunnel

L'ajustement de nos résultats expérimentaux montre que seuls les temps d'échappements des deux sortes de pièges changent avec la tension ou la température. Ainsi l'évolution de la diffusion spectrale est gouvernée uniquement par l'évolution de τ_{\uparrow} .

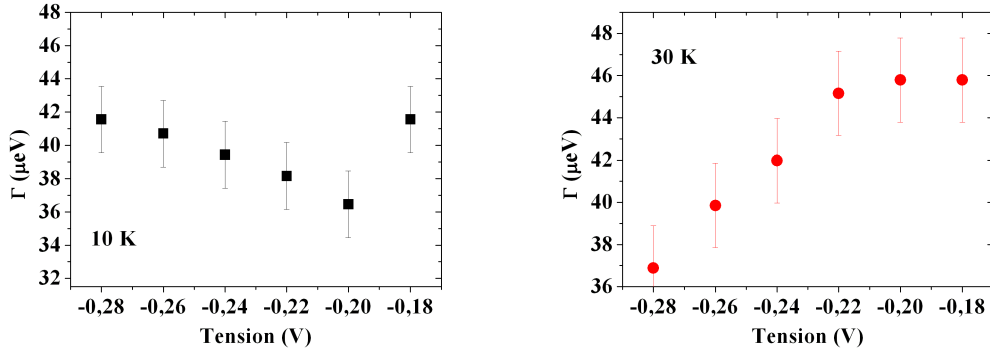


FIG. 4.39 – Evolution de la largeur à mi-hauteur de la boîte quantique en fonction de la tension appliquée pour $T=10\text{ K}$ (a) et $T=30\text{ K}$ (b).

Contrôle du temps d'échappement des pièges par effet tunnel

Les temps d'échappement $\tau_{\uparrow 1}$ et $\tau_{\uparrow 2}$ des deux types de TLS dépendent de la tension appliquée. La température contribue également à la réduction du temps d'échappement (voir fig. 4.38). Par analogie avec les calculs effectués sur le temps de vie de l'exciton sous champ électrique par Oulton [14] et les études de Fry sur les processus d'échappement et de capture sous champ électrique [15], nous utilisons un modèle WKB à 1 dimension pour modéliser l'évolution du temps d'échappement de ces pièges avec le champ électrique.

Dans un premier temps, nous pouvons supposer que l'effet en température est identique à celui identifié pour les boîtes que nous avons considéré au début du chapitre. Nous supposons que les effets en tension et en température sont découplés. Le temps d'échappement des pièges τ_{\uparrow} (piège singulier ou $N-1$ pièges identiques) doit donc vérifier une équation de la forme :

$$\frac{1}{\tau_{\uparrow}} = \frac{1}{\tau_{\text{tunnel}}} + \frac{1}{\tau_1} n_1(T) + \frac{1}{\tau_2} n_2(T) + \frac{1}{\tau_3} \frac{P^\beta}{(P^\beta + P_0^\beta)} \quad (4.64)$$

Dans le premier terme, le temps tunnel τ_{tunnel} est calculé à partir de la formule 4.51. Les deux termes suivants correspondent à l'échappement par absorption de phonon acoustique ou optique et le dernier terme est dû au processus Auger. Dans la figure 4.40, nous représentons l'évolution de l'inverse du temps d'échappement pour le piège singulier et les $N - 1$ pièges identiques. Si le temps d'échappement vérifie l'équation 4.64, où les effets en tension et en température sont additifs, la courbe à 30 K doit être simplement une translation de la courbe à 10 K . Pour le piège singulier (figure (b)), cette additivité pourrait être supposée au vu des barres d'erreur présentes. Mais en considérant les $N - 1$ TLS, nous pouvons constater que l'évolution de $1/\tau_{\uparrow 1}$ à 30 K n'est pas la translation de l'évolution de $1/\tau_{\uparrow 1}$ à 10 K . Les effets en température et en tension ne sont pas additifs. Les processus d'échappement associés ne sont pas découplés : la température et la

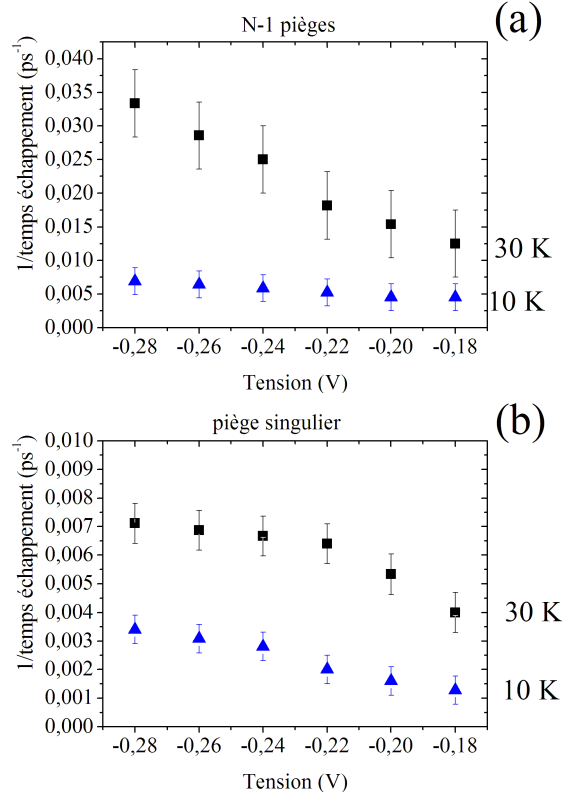


FIG. 4.40 – Evolution de l'inverse du temps d'échappement en fonction de la tension appliquée pour le piège singulier (b) et les N-1 pièges (a) pour $T=10$ K et $T=30$ K.

tension doivent intervenir dans un même processus d'échappement. Le dépiégeage par effet tunnel est thermoactivé, c'est à dire assisté par absorption de phonons. Cet effet a été étudié par Karpus et Perel pour comprendre la dynamique des niveaux profonds sous champ électrique [109].

Ils montrent que le temps tunnel peut s'écrire :

$$\frac{1}{\tau_{\text{tunnel}}} = \frac{1}{\tau_{\infty}(T)} \exp \left[\frac{-4}{3\hbar e \mathcal{F}} \sqrt{2m^* E_I^3} \right] \quad (4.65)$$

où $\tau_{\infty}(T)$ est le temps d'échappement limite correspondant à la limite mathématique en champ infini. C'est ce terme qui contient phénoménologiquement la thermoactivation de l'effet tunnel. Nous rappelons que m^* est la masse effective de la quasi-particule confinée (électron ou trou), \mathcal{F} le champ électrique régnant et E_I est l'énergie d'ionisation des pièges.

Nous ajustons l'évolution des temps d'échappement à partir de l'expression 4.64. Le temps tunnel est alors défini par la formule 4.65. Les résultats de l'ajustement sont représentés sur la figure 4.41. Notre modélisation semble reproduire de manière satisfaisante l'évolution des temps d'échappement du piège singulier

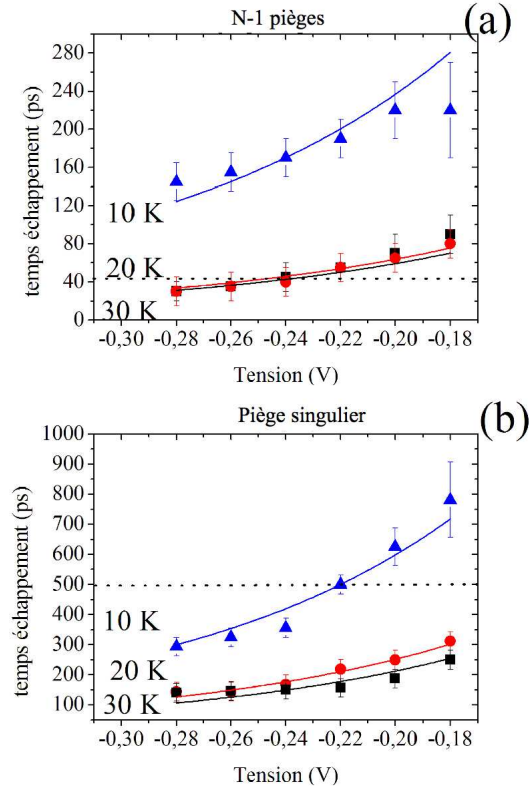


FIG. 4.41 – (a) : Ajustement théorique de l'évolution du temps d'échappement du piège singulier τ_{12} pour $T=10\text{ K}$, $T=20\text{ K}$ et $T=30\text{ K}$. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage du TLS singulier $\tau_{12} = 500\text{ ps}$. Figure (b) : Evolution du temps d'échappement des $N - 1$ piège τ_{12} pour $T=10\text{ K}$, $T=20\text{ K}$ et $T=30\text{ K}$. La ligne horizontale correspond au temps de piégeage des N pièges avec $\tau_{12} = 45\text{ ps}$.

et des $N - 1$ pièges identiques. Nous allons à présent donner et commenter les paramètres de notre modélisation.

Comme nous ne connaissons pas la nature des charges piégées, trou ou électron, dans l'analyse des résultats expérimentaux, il nous faut considérer plusieurs cas :

- S'il s'agit d'un électron piégé dans le piège singulier ($m_e^* = 0.07m_0$) l'énergie d'ionisation de ce piège vaut $E_i^e = 245\text{ meV}$.
- Si c'est un trou ($m_h^* = 0.34m_0$), $E_i^h = 145\text{ meV}$.

Nous déterminons un temps d'échappement limite $\tau_\infty = 2 \times 10^{-4}\text{ ps}$ à 10 K et $\tau_\infty = 7.3 \times 10^{-5}\text{ ps}$ à 30 K .

Pour les $N - 1$ pièges, nous trouvons :

- pour un électron, une énergie d'ionisation de $E_i^e = 225\text{ meV}$.
- pour un trou, une énergie d'ionisation $E_i^h = 138\text{ meV}$.

Le temps d'échappement limite τ_∞ vaut $1.4 \times 10^{-4}\text{ ps}$ à 10 K et $3.5 \times 10^{-5}\text{ ps}$ à 30 K . Les temps d'échappement limites n'ont pas de signification physique

puisque'ils correspondent aux temps tunnel en champ électrique infini, mais la comparaison de leur valeur pour 10 K et 30 K permet de quantifier la thermoactivation du processus d'échappement par effet tunnel. Pour les deux catégories de pièges, nous observons une diminution des temps d'échappement limite τ_∞ avec la température mais elle n'est pas identique pour les deux catégories de pièges. Pour le piège singulier, le rapport $\tau_\infty(10K)/\tau_\infty(30K)$ vaut 3.65 et pour les N-1 pièges, $\tau_\infty(10K)/\tau_\infty(30K)$ vaut 2.5. Cette différence peut provenir du comportement de chaque piège qui est très sensible à son environnement propre. Nous allons maintenant résumer les informations que notre étude apporte sur la nature des défauts.

Nature des porteurs, sources de fluctuation électrostatique

L'étude de boîtes quantiques sous champ électrique transverse nous permet d'obtenir des informations sur la nature des pièges pouvant influencer ces boîtes quantiques. Le piège singulier, qui perturbe fortement la boîte quantique a sensiblement les mêmes énergies d'ionisation que les autres pièges, environ 140 meV dans le cas d'un trou et 240 meV pour un électron. Mais il diffère des autres pièges par un décalage Stark beaucoup plus important (environ 5 fois plus important). Ceci peut s'expliquer si on suppose que le défaut singulier est beaucoup plus proche de la boîte que les autres défauts, le champ électrique engendré par ce défaut est alors plus intense.

Nous constatons par ailleurs que la dynamique de piégeage et dépiégeage du défaut singulier est plus lente ($\tau_{l2}=500$ ps) que celle des défauts identiques ($\tau_{l1}=45$ ps) et que la thermoactivation de l'échappement est plus importante pour ces derniers que pour le TLS singulier. Ces deux résultats sont cohérents si on tient compte du fait que les processus de capture et d'échappement dépendent du spectre des états du défaut et de son environnement. Ces processus seront facilités par la présence de niveaux à des énergies intermédiaires entre les niveaux profonds des défauts et le continuum de la couche de mouillage. Ainsi la dynamique de fluctuation de l'état sera hautement dépendante du défaut et de son environnement. Il reste une interrogation : Pour quelles raisons un défaut unique présente-t-il un spectre de ses états liés différent de ceux des autres défauts ?

Nous allons maintenant essayer d'identifier la nature de ces défauts. Les énergies d'ionisation sont relativement importantes, suggérant des défauts profonds. Ces défauts pourraient être ceux qu'utilise Sercel pour expliquer l'absence de "bottleneck" dans les boîtes quantiques [110]. Les défauts qu'il considère sont des défauts natifs ponctuels, identifiés par Lang en 1974 (classés M1, M2 etc...) [111], qui apparaissent lors de la croissance d'InAs sur GaAs. Sercel montre que de tels défauts électroniques, possédant des énergies d'ionisations de 180 meV, placés autour de la boîte quantique constituent une source d'électron pour la boîte quantique. En effet des électrons piégés dans ces défauts (à moins de 10 nm de la

boîte quantique) peuvent passer par effet tunnel dans la boîte. Cet effet pourrait expliquer pourquoi le "bottleneck" n'a jamais été observé. En considérant des défauts de type M1 (densité moyenne de 10^{10} cm^{-2} [112]), qui sont des lacunes d'atomes d'arsenic, Sercel montre que la densité de ces défauts est insuffisante pour pouvoir contourner le bottleneck. Il conclut alors que la densité de défauts n'est pas homogène et doit être très importante autour de la boîte quantique (zone de fortes contraintes). L'hypothèse de Sercel est de fait compatible avec la densité très élevée de défauts que nous avons évalué par ailleurs dans l'étude de la boîte LG (3.10^{13} défauts par cm^{-2} dans le cas d'impuretés).

La coexistence de défauts profonds et de boîtes quantiques dans la couche d'InAs a été par ailleurs mise en évidence plus récemment par Lin *et al* grâce à des expériences de Spectroscopie Transitoire de Défauts Profonds (DLTS) [113]. Ces expériences consistent à charger les défauts à l'aide d'une tension transitoire puis à étudier l'échappement des charges piégées en fonction de la température. Lin montre alors que les défauts M1, M2 etc..., donc ceux utilisés par Sercel, se concentrent à l'interface InAs/GaAs dans les zones de fortes contraintes, c'est à dire près des boîtes. Ainsi, comme l'avait proposé Sercel, la densité de défauts n'est pas homogène.

Dans notre cas, l'étude de la transition Lorentzienne-Gaussienne a permis d'estimer une valeur pour le nombre de pièges influençant la boîte quantique (~ 100) et de calculer une densité moyenne de défauts (impuretés) de l'ordre de $3.10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Mais que se passe-t-il si les défauts sont spécifiques à la nucléation des îlots d'InAs et donc concentrés près de la boîte. La densité moyenne calculée est en fait une densité locale au niveau de la boîte. Nous allons calculer la densité moyenne de ces défauts. Ces 100 défauts se concentrent à l'interface InAs/GaAs dans la zone de fortes contraintes engendrées par la boîte quantique. Si nous supposons que la densité de boîte vaut $n_{QD} = 10^{10}$ boîtes par cm^2 , nous pouvons calculer la densité moyenne de défauts qui vaut $N.n_{QD}$. Nous trouvons alors une densité moyenne de défauts de $10^{12}.\text{cm}^{-2}$. Cette valeur reste élevée par rapport aux valeurs trouvées par d'autres groupes, par exemple ceux de Blood *et al* ($10^{10}.\text{cm}^{-2}$) [112].

Cependant l'énergie d'ionisation des défauts électroniques considérés par Sercel (180 meV) est un peu faible comparée à la valeur que nous avons obtenue expérimentalement (240 meV). Mais si on se réfère à des travaux plus récents, réalisés par Blood *et al* [112], nous trouvons que l'énergie des défauts (240 meV) perturbant la boîte étudiée pourrait correspondre à l'énergie d'ionisation (230 meV) de défaut de type M2.

Une question demeure : la boîte quantique n'est pas autant affectée par l'effet tunnel que les pièges le sont puisque nous détectons sa luminescence. D'un premier abord, ce résultat est surprenant car l'énergie d'ionisation de la boîte est proche de celle des pièges. Les travaux de Lang *et al* peuvent cependant expliquer une telle phénoménologie [114]. Ils mettent en évidence le fait que les

défauts ponctuels se couplent très efficacement avec les phonons. Ainsi pour des confinements similaires, les défauts ponctuels seraient plus sensibles à un effet tunnel thermoactivé que les boîtes quantiques.

En résumé, l'étude de la diffusion spectrale sous champ électrique a donné accès aux énergies d'ionisation des défauts influençant la boîte, information essentielle si on souhaite déterminer leur nature. D'après nos résultats, il semblerait que les défauts soient natifs et ponctuels se concentrant dans les zones de fortes contraintes.

Quelque soit la nature des TLS, il apparaît clairement que nous parvenons à contrôler électriquement les fluctuations de charge dans les pièges, c'est-à-dire que nous réalisons un contrôle électrique de la diffusion spectrale dont l'aspect le plus important est le rétrécissement par le mouvement assisté par effet tunnel.

4.3.7 Rétrécissement par le mouvement assisté par effet tunnel

Expérimentalement l'objectif de nos travaux était d'utiliser l'effet tunnel pour réduire le temps d'échappement des pièges et atteindre ainsi un régime où le temps de corrélation des fluctuations de l'environnement serait essentiellement le temps de dépiégeage. Nous allons détailler à présent les différents aspects du contrôle de la diffusion spectrale affectant une boîte quantique par un champ électrique.

Une étude détaillée du contraste a permis de prendre en compte les effets du piège singulier et de mesurer l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 0 phonon avec la tension appliquée. Cette étude est résumée sur la figure 4.39. Dans la section précédente nous avons montré que l'échappement de pièges est dominé par l'effet tunnel. Il reste à voir si la modélisation de l'échappement permet de retrouver l'évolution de la largeur à mi-hauteur. Le résultat de cette modélisation est représenté sur la figure 4.42 en trait plein. Les valeurs expérimentales de la largeur à mi-hauteur, qui sont indépendantes de notre modélisation microscopique, correspondent aux symboles.

Nous pouvons voir sur la figure 4.42 que l'évolution théorique de Γ calculée à partir d'un échappement assisté par effet tunnel reproduit correctement l'évolution expérimentale de la largeur à mi-hauteur mesurée à 10 K et 30 K.

- A 10 K, le temps d'échappement $\tau_{\uparrow 1}$ est beaucoup plus grand que le temps de piégeage $\tau_{\downarrow 1}$ (voir fig. 4.38). Le temps de corrélation τ_{c1} vérifie l'égalité :

$$\frac{1}{\tau_{c1}} = \frac{1}{\tau_{\downarrow 1}} + \frac{1}{\tau_{\uparrow 1}} \text{ avec } \tau_{\uparrow 1} \gg \tau_{\downarrow 1} \quad (4.66)$$

Les variations de $\tau_{\uparrow 1}$ avec la tension appliquée n'affectent quasiment pas τ_{c1} . En revanche, Σ augmente puisque le temps d'échappement diminue. Ce comportement est analogue à celui identifié dans la première section de ce chapitre quand on augmente la température ou la puissance d'excitation. De fait, Γ augmente lorsque $\tau_{\uparrow 1}$ diminue

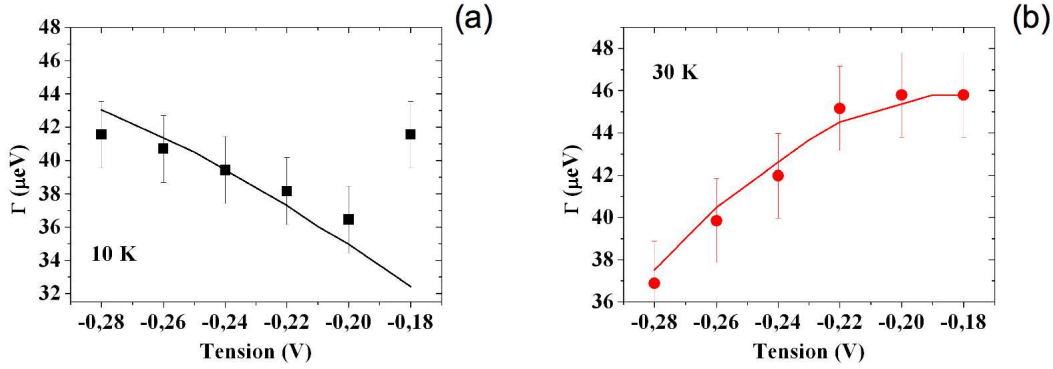


FIG. 4.42 – Evolution de la largeur à mi-hauteur à 10 K (a) et 30 K (b) mesurée expérimentalement (symboles) et calculée par notre modèle WKB (trait plein) avec la tension V_a appliquée.

- A 30 K, l'agitation thermique a suffisamment réduit $\tau_{\uparrow 1}$ pour que celui-ci soit de l'ordre de grandeur de $\tau_{\downarrow 1}$ (voir fig. 4.38). On peut voir sur cette figure que pour des tensions plus négatives, c'est à dire des champs électriques plus intenses, le temps d'échappement est petit devant le temps de piégeage. Le temps de corrélation vaut alors :

$$\frac{1}{\tau_{c1}} = \frac{1}{\tau_{\downarrow 1}} + \frac{1}{\tau_{\uparrow 1}} \text{ avec } \tau_{\uparrow 1} \ll \tau_{\downarrow 1} \quad (4.67)$$

Nous passons dans un régime où τ_{c1} est commandé par le temps d'échappement (voir fig. 4.41). Quand $\tau_{\uparrow 1} < \tau_{\downarrow 1}$, le produit $\Sigma\tau_c$ est proportionnel à $\tau_{\uparrow 1}^{3/2}$. Ainsi quand le champ électrique augmente, ce produit décroît par réduction de $\tau_{\uparrow 1}$ par effet tunnel. Cette diminution s'accompagne bien d'une réduction de la largeur à mi-hauteur due au rétrécissement par le mouvement assisté par effet tunnel (voir fig. 4.42).

En revanche la largeur mesurée à 10 K pour une tension $V_a = -0.18$ V est en désaccord avec la modélisation (voir fig. 4.42(a)). Ce désaccord provient du fait que lors de l'ajustement du contraste à 10 K et à -0.18V nous avons dû changer la largeur de saturation Σ_s pour ce point uniquement. Ce qui est une manifestation d'un changement du décalage Stark puisque $\Sigma_s = 2\Delta\sqrt{N-1}$. Ce changement de Σ_s peut s'interpréter au vu de la figure 4.27. En effet pour une tension de -0.18 V, les raies X et X^- coexistent ; l'effet Stark affectant plus une entité chargée (X^-) qu'une entité neutre (X) tout couplage entre X et X^- conduit à une augmentation des décalages Stark, et donc à une augmentation de Σ_s . Dans la référence [6], Seidl *et al* montrent qu'au voisinage de la résonance entre X et X^- , il apparaît un élargissement de la raie.

En conclusion, cette dernière étude a permis de montrer que le champ électrique activait le dépiégeage des défauts par effet tunnel et pouvait contrôler la diffu-

sion spectrale. A faible température, la diminution du temps d'échappement n'est pas suffisante pour que le temps de corrélation change et seule l'amplitude des fluctuations augmente (comme pour les boîtes sans champ). En chauffant, nous thermoactivons l'échappement par effet tunnel, ce qui réduit suffisamment le temps de dépiégeage pour que le temps de corrélation diminue. La diffusion spectrale passe en régime de "fluctuations rapides", de rétrécissement par le mouvement. La raie est alors d'autant plus fine que le champ électrique est intense et nous pouvons réduire sa largeur de 20 %.

Ainsi l'utilisation combinée de la température et d'un champ électrique nous place dans une phénoménologie de la diffusion spectrale analogue à celle de la RMN. Contrairement aux études sans champ électrique, où une augmentation de température diminuait le rétrécissement par le mouvement, sous fort champ électrique, nous sommes dans une situation où la température amplifie la réduction de la largeur de cette raie.

Deux questions se posent alors à la conclusion de cette étude. Peut-on réduire d'avantage l'élargissement de la raie à 0 phonon ? Est-ce que la méthode proposée pour activer le rétrécissement par le mouvement est utilisable pour d'autres boîtes ? Nous remarquons que l'activation par effet tunnel du rétrécissement par le mouvement est limitée par la zone d'existence de la raie. En effet, si le champ électrique est trop intense, l'électron de la boîte quantique sort par effet tunnel. Comme la dynamique de fluctuation de l'environnement est d'autant plus rapide que le champ électrique est intense, les boîtes très profondes (avec des énergies de recombinaison faibles) seront mieux protégées de l'effet tunnel que les boîtes peu profondes. Ces boîtes à niveaux profonds, seront donc les meilleures candidates pour contrôler de la diffusion spectrale avec un champ électrique. Pour les boîtes moins profondes, une solution consiste à placer la boîte quantique dans un champ électrique, tel que l'électron de la boîte quantique demeure confiné, et ensuite d'élever la température (en gardant $T < 40K$) pour amplifier le rétrécissement par le mouvement. Cependant, quelle que soit la nature de la boîte, l'effet en tension reste relativement faible. A cause de la structure de diode, les variations relatives du champ électrique sur le domaine d'existence de la raie X sont faibles (dans notre cas 20 %), la plage de réduction du temps d'échappement est limitée (dans notre cas, il est divisé par trois). Une solution serait de favoriser la thermoactivation de l'effet tunnel en augmentant la concentration de défauts. Nous pourrions imaginer que les niveaux de chaque défaut soient couplés voir même résonants, ce qui accélérerait considérablement les fluctuations de l'environnement.

4.4 Conclusion

Le premier chapitre de ce manuscrit s'achevait en montrant que la décohérence des boîtes quantiques à basse température n'était pas comprise. Les largeurs de raie à basse température ne peuvent être expliquées en considérant seulement un couplage avec les phonons optiques ou acoustiques. Pour pouvoir comprendre cette décohérence, il faut tenir compte du phénomène de diffusion spectrale produit par les fluctuations de l'environnement électrostatique autour de la boîte. Ce dernier chapitre, exposant l'ensemble de nos résultats expérimentaux, démontre comment le phénomène de diffusion spectrale permet d'expliquer l'évolution de la raie à 0 phonon des boîtes quantiques d'InAs avec la température et la puissance d'excitation, avec ou sans champ électrique.

Sans appliquer de champ électrique, nous avons mis en évidence le fait qu'une boîte quantique pouvait présenter une transition de son profil spectral : à basse température ou basse puissance d'excitation le profil est lorentzien et devient gaussien si on élève la température ou la puissance. C'est la manifestation du passage d'un régime de fluctuations rapides ou "rétrécissement par le mouvement", à un régime de fluctuations lentes pour la diffusion spectrale. Ce rétrécissement par le mouvement à basse température ou basse puissance d'excitation est la phénoménologie contraire à celle observée en RMN où le rétrécissement par le mouvement a lieu à forte température. Cette différence provient de la nature des fluctuations.

Pour expliquer les fluctuations de l'environnement électrostatique, nous avons donc développé un modèle microscopique qui considère une distribution de pièges autour de la boîte quantique et utilise la modélisation TLS. Nous parvenons alors à reproduire le processus gaussien régissant les fluctuations de l'énergie de recombinaison de la paire électron-trou. Ayant caractérisé le processus de fluctuation par son temps de corrélation et son amplitude de fluctuations, il est alors possible de reproduire quantitativement les évolutions du contraste et de la largeur de la raie avec la puissance ou la température.

Ce modèle microscopique explique l'origine du rétrécissement par le mouvement observé à basse température qui s'oppose aux résultats de RMN : pour les boîtes quantiques les processus de fluctuation sont déterminés par les mécanismes de piégeage et de dépiégeage. Comme l'échappement des porteurs est bien moins efficace que la capture, et que cette dernière est peu sensible aux changements de puissance ou de température, le temps de corrélation τ_c est constant avec la température ou la puissance. Cependant, l'amplitude de fluctuation Σ augmente avec ces deux paramètres. La boîte quantique n'est alors plus en régime de rétrécissement par le mouvement, son profil devient gaussien.

Cette même modélisation nous permet d'interpréter les résultats issus d'autres boîtes quantiques et en particulier d'apporter une réponse au problème très débattu de l'élargissement linéaire en température.

Dans une volonté de contrôler les fluctuations de l'environnement électro-

statique, nous choisissons d'étudier les boîtes quantiques contenues dans des structures Schottky. Le champ électrique nous permet de contrôler la dynamique de fluctuation des charges autour de la boîte : d'une part, nous constatons que le champ électrique permet de changer le poids relatif des deux raies associée à la boîte quantique qui apparaissent à 10 K et d'autre part nous voyons qu'un fort champ électrique permet à 30 K de réduire la largeur à mi-hauteur de la raie. En supposant deux classes pour les défauts, nous parvenons à reproduire quantitativement l'effet d'un environnement complexe sur le spectre de raie d'une boîte quantique. Le processus d'échappement apparaît dominé par l'effet tunnel.

Si à basse température l'activation des fluctuations par le champ électrique n'est pas assez importante pour faire passer la boîte dans un régime de rétrécissement par le mouvement, une élévation de température accélère les mécanismes de dépiégeage par thermoactivation de l'effet tunnel et fait passer la boîte dans un régime de fluctuations rapides. Ainsi le rétrécissement par le mouvement est assisté par effet tunnel.

Conclusion

Dans cette thèse consacrée à l'étude des mécanismes de déphasage affectant l'état excitonique d'une boîte quantique de semiconducteurs, nous nous sommes intéressés au rôle de la diffusion spectrale sur le spectre d'émission.

Dans un premier temps nous avons constaté qu'à basse température et à basse puissance d'excitation, la diffusion spectrale affectant les boîtes quantiques est en régime de rétrécissement par le mouvement. Le système sort de ce régime par augmentation de la température ou de la puissance d'excitation. Notre modélisation et nos résultats expérimentaux permettent d'affirmer que le régime de diffusion spectrale change du fait d'une augmentation de l'amplitude de fluctuation et non d'une réduction du temps de corrélation contrairement à la RMN.

Pour comprendre ce résultat, nous avons développé ensuite un modèle microscopique décrivant les fluctuations de l'environnement électrostatique. Il considère un ensemble de défauts pouvant piéger des charges. Si ces pièges contiennent une charge libre, ils induisent par effet Stark un décalage de la raie. Ce décalage, le nombre de pièges, les temps de piégeage et de dépiégeage, deviennent les paramètres de notre modélisation. Nous reproduisons de manière quantitative nos résultats expérimentaux et nous pouvons ainsi identifier les mécanismes qui provoquent les fluctuations de l'environnement électrostatique. Ce dernier est d'autant plus instable que la température et la puissance d'excitation sont élevés. L'asymétrie des processus de piégeage et de dépiégeage dans les défauts entraîne le comportement non conventionnel du rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques.

Initialement développé pour expliquer le comportement d'une boîte, ce modèle microscopique s'avère général et permet en particulier de comprendre le comportement d'autres boîtes. De plus, notre modélisation parvient de manière très satisfaisante à reproduire l'évolution à basse température des largeurs spectrales des boîtes quantiques. Ce phénomène restait, jusqu'à nos travaux, sans explication satisfaisante : la dépendance en température suggérait un couplage aux phonons acoustiques mais ne pouvait être reproduite avec ce seul couplage. En montrant que les phonons n'agissent pas directement sur la boîte mais sur les fluctuations de l'environnement, nos résultats expérimentaux et notre modélisation sont les premiers à expliquer la dépendance en température des largeurs de raie basse température.

Nous proposons une méthode expérimentale de contrôle de la diffusion spec-

trale par un champ électrique. Elle consiste à modifier par effet tunnel le temps d'échappement des pièges gouvernant le régime de diffusion spectrale. Nous parvenons ainsi à réduire suffisamment ce temps de dépiégeage pour accélérer la dynamique des fluctuations. Nous pouvons alors amplifier le rétrécissement par le mouvement, ce qui revient à protéger d'avantage la boîte quantique des couplages électrostatiques. Nos résultats montre une réduction de 20% de la largeur. Pour pouvoir augmenter cette valeur, il faut pouvoir appliquer des champs électriques plus intenses. Aussi, pour des utilisations ultérieures, cette méthode n'est envisageable que si les niveaux électroniques de la boîte sont suffisamment profonds pour que l'échappement des porteurs hors de la boîte par effet tunnel reste négligeable. Cependant, la possibilité d'atteindre la limite radiative avec cette méthode demeure un point d'interrogation.

Ce protocole expérimental constitue une première méthode pour la réduction des effets de fluctuations de l'environnement et pourrait être directement applicables à d'autres système uniques (nanocristaux, molécules, nanobilles métalliques).

Pour améliorer encore le rétrécissement tout en gardant les champs électriques de l'ordre de ceux utilisés au cours de cette thèse (100 kV.cm^{-1}), nous pouvons envisager d'accélérer les fluctuations en amplifiant le couplage entre défauts. Dans cette perspective, deux voies s'ouvrent, soit augmenter la concentration locales de charges libres par la présence de puit quantique proche des défauts, soit concentrer davantage les impuretés autour de la boîte. Dans les deux cas, nous aurions un accroissement de l'amplitude de fluctuation, ce qui est défavorable au rétrécissement par le mouvement. Cependant, la dynamique de fluctuations de l'état d'un défaut serait beaucoup plus rapide du fait de couplage avec le puit ou d'autres défauts et pourrait compenser voir dominer l'augmentation d'amplitude. Le rétrécissement par le mouvement serait alors amplifié.

Bibliographie

- [1] Angela Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couples verticalement*. Universit Pierre et Marie Curie, 2002.
- [2] S. Hameau, J. N. Isaia, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, and J. M. Gérard. *Far-infrared magnetospectroscopy of polaron states in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :85316, 2002.
- [3] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. *Excitonic polarons in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :146803, 2002.
- [4] I. Favero. *Décohrence, symtéries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs*. Thèse de doctorat de l'université Paris VI, 2005.
- [5] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassaboïs, C. Delalande, P. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, and J. M. Gerard. *Line narrowing in single quantum dots : Toward the control of environment*. *Phys. Rev. B*, 66 :041306, 2002.
- [6] S. Seidl, M. Kroner, P. A. Dalgarno, A. Hoge, J. M. Smith, M. Ediger, B. D. Gerardot and J. M . Garcia, P. M . Petroff, K. Karrai, and R. J . Warburton. *Absorption and photoluminescence spectroscopy on a single self-assembled charge-tunable quantum dot*. *Phys. Rev. B*, 72 :195339, 2005.
- [7] S. A. Empedocles and D. J. Norris and M. G. Bawendi. *Photoluminescence spectroscopy of single CdSe nanocrystallite quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :3873, 1996.
- [8] V. Turck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Phol, D. Bimberg, and R. Steingruber. *Effects of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 61(15) :9944, 2001.
- [9] H. Peter. Lu, Luying Xun, and X. Sunney Xie. *Single-Molecule Enzymatic Dynamics*. *Science*, 282 :1877, 1998.
- [10] H. D. Robinson. *Light-induced diffusion in single self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 61(8) :R5086, 2000.
- [11] K. Wodkiewicz, B. W. Shore, and J. H. Eberly. *Pre-Gaussian noise in strong laser-atom interactions*. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1(3) :398, 1984.

- [12] S. E. Shore, J-P. Ansermet, and C. P. Slichter. *Nuclear-Magnetic-Resonance Study of the Bonding and Diffusion of CO Chemisorbed on Pd*. *Phys. Rev. Lett*, 9(58) :953, 1987.
- [13] A. V.
, I. Magnusdottir, B. TromboUskov
rg, J. Mork, and R. Lang. *Line Broadening causes by Coulomb carrier-carrier correlations and dynamics of carrier capture and emission in quantum dots*. *Appl. Phys. Lett*, 79(11) :1679, 2001.
- [14] R. Oulton, J. J. Finley, A. D. Ashmore, I. S. Gregory, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. J. Steer, S. L. Liew, M. A. Migliorato, and A. J. Cullis. *Manipulation of the homogenous linewidth of an individual In(Ga)As quantum dot*. *Phys. Rev. B*, 66 :045513, 2002.
- [15] P. W. Fry, I. E. Istkevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill, and J. C. Clark. *Inverted electron-hole alignment in InAs-GaAs self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. Lett*, 84(4) :733, 2000.
- [16] Sabine Laurent. *Orientation optique et relaxation du spin du trion dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, 2004.
- [17] H. Mathieu. *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques*. Dunod, 2001.
- [18] P. Y. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, 1999.
- [19] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures*. Wiley, 1999.
- [20] N. Chand, J. P. van der Ziel, S. N. G. Chu, and N. K. Dutta. Excellent uniformity and very low (≈ 50 A/cm²) threshold current density strained InGaAs quantum well diode lasers on GaAs substrate. *Appl. Phys. Lett.*, 58 :1704, 1991.
- [21] Y. Miyamoto, M. Cao, Y. Shinagi, K. Furuya, Y. Suematsu, K. G. Ravikumar, and S. Arai. *Jpn. J. Appl. Phys*, 26 :L225, 1987.
- [22] K. Otsubo, N. Hatori, M. Ishida, S. Okumura, T. Akiyama, Y. Nakata, H. Ebe, M. Sugawara, and Y. Arakawa. *Temperature-Insensitive Eye-Opening under 10-Gb/s Modulation of 1.3- μ m P-Doped Quantum-Dot Lasers without Current Adjustments*. *Jpn. J. Appl. Phys*, (43) :1124, 2004.
- [23] D. C. Unitt, A. J. Bennett, P. Atkinson, K. Cooper, P. See, D. Gevaux, M. B. Ward, R. M. Stevenson, D. A. Ritchie, and A. J. Shields. *Quantum dots as single-photon sources for quantum information processing*. *J. Opt. B*, 7 :S129, 2005.

- [24] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg. Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 81(5) :1110–1113, 1998.
- [25] G. S. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto. Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 86(17) :3903–3906, 2001.
- [26] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Loffer, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. *Strong coupling in a single quantum dot semiconductor microcavity system*. *Nature*, 432 :197, 2004.
- [27] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*. *Nature*, 432 :200, 2004.
- [28] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaitre, J. Hours, J. M. Gerard, and J. Bloch. *Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity*. *Phys. Rev. Lett*, 95 :067401, 2005.
- [29] D. Loss and D. P. DiVincenzo. *Quantum computation with quantum dots*. *Phys. Rev. A*, (57) :120, 1998.
- [30] M. S. Sherwin, A. Imamoglu, and T. Monroy. *Quantum computation with quantum dots and terahertz cavity quantum electrodynamics*. *Phys. Rev. A*, (60) :3508, 1999.
- [31] B. Patton, U. Woggon, and W. Langbein. *Coherent Control and Polarization Readout of Individual Excitonic States*. *Phys. Rev. Lett*, (95) :266401, 2005.
- [32] C. Kammerer. *Spectroscopie Optique de boîtes quantiques uniques : Effets de l'environnement*. Thèse de doctorat de l'université Paris VI, 2002.
- [33] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. *Phys. Rev. B*, 63 :233301, 2001.
- [34] I. Favero, G. Cassaboïs, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, P. Roussignol, and J. M. Gerard. *Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 63 :233301, 2001.
- [35] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. *Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 62 :R4809, 2000.
- [36] P.G. Blome, M. Wenderoth, M. Hubner, R. G. Ulbrich, J. Porsche, and F. Scholtz. *Temperature-dependent linewidth of single InP/GaxIn(1-x)P quantum dots : Interaction with surrounding charge configurations*. *Phys. Rev. B*, (61) :8382, 2000.

- [37] R. Kubo. *Fluctuation, Relaxation and Resonance in Magnetic Systems*. D. Ter Harr Olivier and Boyd, 1962.
- [38] P. W. Anderson. *A Mathematical Model for the Narrowing of Spectral Lines by Exchange or Motion*. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 9 :316, 1954.
- [39] F. Meier and B. Zakharchenya. *Optical Orientation*. North-Holland.
- [40] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Few-particles effects in single CdTe quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :121314, 2002.
- [41] R. G. Neuhauser, K. T. Shimizu, W. K. Woo, S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi. *Correlation between Fluorescence Intermittency and Spectral Diffusion in Single Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 85(15) :3301, 2000.
- [42] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1992.
- [43] B. Sapoval and C. Hermann. *Physique des semi-conducteurs*. Ellipses, 1990.
- [44] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders, 1976.
- [45] E. O. Kane. *Band structure of indium antimonide*. *Phys. Chem. Solid*, 1 :249, 1957.
- [46] R. S. Knox. *Theory of excitons*. Academic Press Inc., U.S., 1976.
- [47] P. Lodahl, A. Floris van Driel, I. S. Nikolaev, A. Irman, K. Overgaag, D. Vanmaekelbergh, and W. L. Vos. *Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals*. *Nature*, 430 :654, 2004.
- [48] C. Santori, D. Fattal, J. Vucovic, G.S. Solomon, and Y. Yamamoto. *Indistinguishable photons from a single-photon device*. *Nature*, 419, 2002.
- [49] Y. Arakawa and H. Sakaki. *Multidimensionnal quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*. *Appl. Phys. Lett*, 40 :11, 1982.
- [50] A.P. Alivisatos. *Semiconductor Clusters, Nanocrystals, and Quantum Dots*. *Science*, 271 :933, 1996.
- [51] S. Coe, W. K. Woo, M. G. Bawendi, and V. Bulovic. *Electroluminescence from single monolayers of nanocrystals in molecular organic devices*. *Nature*, 420 :800, 2002.
- [52] P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P.J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Buratto. *A. Nature*, 406 :968, 2000.
- [53] M. Kuno, D. P. Fromm, A. Gallagher H. F. Hamann, and D. J. Nesbitt. *On/off fluorescence intermittency of single semiconductor quantum dots*. *J. Chem. Phys.*, 115 :1028, 2001.
- [54] I.M. Stransky and L. von Krastanov. *Akad. Wis. Lit. Abh. Math. Naturwiss. Kl. IIb*, 146 :797, 1939.

- [55] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. *Appl. Phys. Lett.*, 47 :1099, 1985.
- [56] N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, M. V. Maximov, I. G. Tabatadze, and P. S. Kopev. *Optical properties of heterostructures with InGaAs-GaAs quantum clusters*. *Semiconductors*, 28 :832–834, 1994.
- [57] A. Hartmann, Y. Ducommun, L. Loubies, K. Leifer, and E. Kapon. *Structure and photoluminescence of single AlGaAs/GaAs quantum dots grown in inverted tetrahedral pyramids*. *Appl. Phys. Lett*, 73(13) :2322, 1998.
- [58] M. H. Baier, S. Wanatabe, E. Pelucchi, and E. Kapon. *High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatterned substrates*. *Appl. Phys. Lett*, 84(11) :1943, 2004.
- [59] D. Chithrani, R. L. Williams, J. Lefebvre, P. J. Poole, and G. C. Aers. *Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self assembled quantum dots*. *Appl. Phys. Lett*, 84(11) :978, 2004.
- [60] A. Portavoce, R. Hull, M. C. Reuter, and F. M. Ross. *Nanometer-scale control of single quantum dot nucleation through focused ion-beam implantation*. *Phys. Rev. B*, 76 :235301, 2007.
- [61] J. Y. Marzin and G. Bastard. *Calculation of the energy levels in InAs/GaAs quantum dots*. *Solid State Communications*, 92(5) :437, 1994.
- [62] N. N. Ledentsov, P. D. Wang, C. M. Sotomayor Torres, A. Y. Egorov, M. V. Maximov, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, and P. S. Kop'ev. *Optical spectroscopic studies of InAs layer transformation on GaAs surfaces*. *Phys. Rev. B*, 50 :12171, 1994.
- [63] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Deebars, and P. M. Petroff. *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*. *Appl. Phys. Lett*, 63 :3203, 1993.
- [64] G. Cassaboïs. *Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs*. Habilitation à diriger les recherches, Paris VI, 2006.
- [65] F. Patella, S. Nufri, M. Fanfoni, E. Placidi, A. Sgarlata, and A. Balzarotti. *Tracing the two- to three-dimensionnal transition in the InAs/GaAs(001) heteroepitaxial growth*. *Phys. Rev. B*, 67 :205308, 2003.
- [66] A. Catellani and P. Ballone. *Inlands at semiconductor interfaces*. *Phys. Rev. B*, 45(24) :14197, 1992.
- [67] Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka, and Y. Arakawa. *Near-Field coherent excitation spectroscopy of InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*. *Appl. Phys. Lett*, 76 :3887, 2000.

- [68] C. Fabre, G. Grynberg, and A. Aspect. *Introduction aux lasers et l'optique quantique*. Ellipses, 1997.
- [69] T. Takagahara. *Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 60(4) :2638, 1999.
- [70] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzele, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître, and J. M. Gerard. *Strong electron-phonon coupling regime in quantum dots : Evidence for everlasting resonant polarons*. *Phys. Rev. Lett*, 83(20) :4152, 1999.
- [71] Gerald. D. Mahan. *Many-Particle Physics*. Plenum Publishing Corporation, 1981.
- [72] C. Kammerer, G. Cassabo, C. Voisin, M. Perrin, C. Delalande, P. Roussignol, and J. M. Gerard. *Interferometric correlation spectroscopy in single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.*, 81 :2737, 2002.
- [73] M. Bayer and A. Forchel. *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 65 :041308, 2002.
- [74] F. Vallée and F. Bogani. *Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs*. *Phys. Rev. B*, 43 :12409, 1991.
- [75] R. G. Neuhauser, K. T. Shimizu, W. K. Woo and S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi. *Correlation between Fluorescence Intermittency and Spectral Diffusion in Single Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :3301, 2000.
- [76] M. E. Pistol, P. Castrillo, D. Hessemann, J. A. Prieto, and L. Samuelson. *Random telegraph noise in photoluminescence from individual self assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 29 :10725, 1999.
- [77] B. Alén, F. Bickel, K. Karrai, R. J. Warburton, and P. M. Petroff. *Stark-Shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett*, 83 :2235, 2003.
- [78] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Wogon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. *Ultralong dephasing time in InGaAs Quantum dots*. *Phys. Rev. Lett*, 87(15) :157401, 2001.
- [79] D. Birkedal, K. Leosson, and J. M. Hvam. *Long lived coherence in self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. Lett*, 87(22) :227401, 2001.
- [80] S. M. Sze. *Physics of Semiconductor Devices*. John Wiley and Sons, 2006.
- [81] R. J. Warburton, C. Schafflein, D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff. *Optical emission from a charge-tunable quantum ring*. *Nature*, 405 :1704, 2000.
- [82] J. J. Finley and P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle,

- and P. A. Maksym. *Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot*. *Phys. Rev. B*, 63 :161305R, 2001.
- [83] F. Findeis, M. Bayer, E. Brehm, A. Zrenner, and G. Abstreiter. *Photo-current and photoluminescence of a single self-assembled quantum dot in electric field*. *Appl. Phys. Lett*, 78(19) :2958, 2001.
- [84] Guillaume Cassaboïs. *Relaxation de cohérence dans les hétérostructures de semiconducteur*. Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie, 1999.
- [85] G. Schulte, W. Grond, D. Haareer, and R. Sibey. *Photochemical hole burning of phthalocyanine in polymer glasses : Thermal cycling and spectral diffusion*. *J. Chem. Phys*, 88(2) :679, 1987.
- [86] E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound. *Resonance absorption by Nuclear Magnetic Moments in a solid*. *Phys. Rev*, 69(1-2) :37, 1946.
- [87] R. J. Cook and H. J. Kimble. *Possibility of direct observation of quantum jumps*. *Phys. Rev. Lett*, 54(10) :1023, 1985.
- [88] W. P. Ambrose and W. E. Moerner. *Fluorescence spectroscopy and spectral diffusion of single impurity molecules in a crystal*. *Nature*, 349 :225, 91.
- [89] M. Berg, C. A. Walsh, L. R. Narasimham, K. A. Littau, and M. D. Fayer. *Dynamics in low temperature glasses : Theory and experiments on optical dephasing, spectral diffusion, and hydrogen tunneling*. *J. Chem. Phys*, 88(3) :1564, 1988.
- [90] J. M. Hayes and G. J. Small. *Non-photochemical hole burning and impurity site relaxation processes in organic glasses*. *Chem. Phys.*, 27(1) :151, 1978.
- [91] W. A. Phillips. *Amorphous Solids, Low-Temperature Properties*. Springer, 1981.
- [92] H. Y. Carr and E. M. Purcell. *Effects of Diffusion on Free Precession in Nuclear Magnetic Resonance Experiments*. *Phys. Rev*, 94 :630, 1954.
- [93] N. Bloembergen, E. M. Purcell, and R. V. Pund. *Relaxation effects in nuclear magnetic resonance absorption*. *Phys. Rev*, 9(6) :935, 1947.
- [94] R. Kubo. *Note on the Stochastic theory of resonance Absorption*. *J. Phys. Soc. Jap*, 9(6) :935, 1954.
- [95] A. I. Burshtein. *Kinetics of the relaxation induced by a sudden potential change*. *Sov. Phys. JETP*, 21(3) :567, 1965.
- [96] A. I. Burshtein. *Kinetics of induced relaxation*. *Sov. Phys. JETP*, 22(4) :939, 1966.
- [97] N. Bouleau. *Processus stochastiques et applications*. Hermann, 2000.
- [98] K. Wodkiewicz, B. W. Shore, and J. H. Eberly. *Noise in Strong laser-atom interactions : Frequency fluctuations and nonexponential correlations*. *Phys. Rev. A*, 30(5) :2390, 1984.
- [99] A. Tokmakoff. *Spectral diffusion*. Cours du MIT.

- [100] A. Jankovic. *Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin*. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, 2004.
- [101] K. E. O'Hara, J. R. Gullingsrud, and J. P. Wolfe. *Auger decay of excitons in CuO₂*. *Phys. Rev. B*, 60 :10872, 1999.
- [102] U. Bockelmann and T. Egeler. Electron relaxation in quantum dots by means of auger processes. *Phys. Rev. B*, 46 :15574, 1992.
- [103] A. Lohner, M. Woermer, M. Elsaesser, and W. Kaiser. *Picosecond capture of photoexcited holes by shallow acceptors in p-type GaAs*. *Phys. Rev. Lett*, 68 :3920, 1992.
- [104] G. Ortner, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Rudin, T. L. Reineckeand, S. Fafard, Z. Wasilewski, and A. Forchel. *Temperature dependence of the zeo-phonon linewidth in InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 70 :201301, 2004.
- [105] Q. Li, Z. Y. Xu, and W. K. Ge. *Carrier capture into InAs/GaAs quantum dots detected by a simple degenerate pump probe technique*. *Solid. State. Comm.*, 2(2) :105, 2000.
- [106] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Durr, C. Bodefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, and S. Huant. *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 58(24) :16221, 1998.
- [107] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus. *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures : The Quantum-Confined Stark Effect*. *Phys. Rev. Lett*, 53(22) :2173, 1984.
- [108] J. M. Smith, P. A. Dalgarno, B. Urbaszek, E. J. Mcghee, G. S . Buller, G. J. Nott, R. J. Warburton, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M . Petroff. *Carrier storage and capture dynamics in quantum-dot heterostructures*. *Appl. Phys. Lett*, 82(21) :3761, 2005.
- [109] V. Karpus and V. I. Perel. *Thermoionization of deep centers in semiconductors in an electric field*. *J.E.T.P Lett.*, 42(10) :403, 1985.
- [110] P. C. Sercel. *Multiphonon assisted tunneling through deep levels : a rapid energy relaxation mechanism in nonideal quantum dot heterostructure*. *Phys. Rev. B*, 51(20) :1995, 1995.
- [111] D. V. Lang, A. Y. Cho, A. C. Gossard, M. Ilegems, and W. Wiegmann. *Study of electrons traps in n-GaAs grown by molecular beam epitaxy*. *J. Appl. Phys*, 47(6) :2558, 1974.
- [112] P. Blood and J. J. Harris. *Deep states in GaAs grown by molecular beam epitaxy*. *J. Appl. Phys*, 56 :993, 1984.

- [113] S. W. Lin, C. Balocco, M. Missous, A. R. Peaker, and A. M. Song. *Coexistence of deep levels with optically active InAs quantum dots*. *Phys. Rev. B*, 72 :165302, 2005.
- [114] D. V. Lang and R. A Logan. *Electric Field dependent carrier capture and escape in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. Lett*, 39(10) :635, 1977.

Alice Berthelot

Spectral Diffusion and Motional Narrowing in quantum dots

Abstract :

The subject of this thesis is spectral diffusion in quantum dots. Created by fluctuations in the electrostatic environment, spectral diffusion affects the emission spectra of these quantum boxes. Our study is based on the analysis of the temperature and the pump power dependence of the photoluminescence spectra, obtained by Fourier transform spectroscopy. We show that the spectral diffusion is generally in the regime of motional narrowing et can exit this regime by an increase in the temperature or pumping power. By these investigations, we probe the mechanisms which are at the origin of electrostatic environmental fluctuations. This allows us to propose a microscopic model for a spectral diffusion source. The model permits the proposition of a protocol to control and amplify the motional narrowing by using an external electric field. This protocol is verified by the final experimental part of this manuscript.

Keywords :

Spectral Diffusion	Motional Narrowing
Quantum dot	Coherence
Nanophysics	InAs/GaAs

Alice Berthelot

Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques

Résumé :

Cette thèse a pour sujet le phénomène de diffusion spectrale dans les boîtes quantiques. Engendrée par les fluctuations de l'environnement électrostatique, il affecte les spectres d'émission de ces boîtes. Notre étude s'appuie sur l'analyse de l'évolution en température et en puissance de pompage des spectres de photoluminescence, obtenus par spectrométrie par transformée de Fourier. Nous constatons que la diffusion spectrale est généralement dans un régime de rétrécissement par le mouvement et peut sortir de ce régime pour une augmentation de température ou de puissance. Par cette étude, nous sondons les mécanismes à l'origine des fluctuations de l'environnement électrostatique. Ces travaux nous permettent de proposer un modèle microscopique pour les sources de la diffusion spectrale. À l'aide de cette modélisation, nous avons pu imaginer un protocole de contrôle et d'amplification du rétrécissement par le mouvement en utilisant un champ électrique. Cette méthode est alors validée par nos résultats.

Mots Clefs :

Retrecissement par le mouvement	Diffusion spectrale
Boîte quantique	Coherence
Nanophysique	InAs/GaAs